

**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

**Халаф Хям Назми Бадр**

**Взаимодействие продуктов распада радона с  
аэрозольными частицами и аналитическими  
фильтрами Петрянова**

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 –2020

**ОГЛАВЛЕНИЕ**

ВВЕДЕНИЕ	4
ГЛАВА 1. АЭРОЗОЛИ, ИХ СВОЙСТВА И МЕТОДЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ	12
1.1. Общая характеристика аэрозолей	12
1.2. Классификация частиц по размерам	16
1.3. Другие характеристики аэрозолей и их влияние на здоровье человека	21
1.4. Радиоактивные аэрозоли	23
1.5. Аэрозоли продуктов распада радона и торона	24
1.6. Распределение радиоактивного аэрозоля по размерам	29
1.7. Фильтрация аэрозолей	30
1.7.1. Механизмы осаждения аэрозольных частиц на фильтр	30
1.7.2. Эффективность аэрозольных фильтров	34
1.7.3. Проблемы при использовании аэрозольных фильтров	41
1.8. Определение размерного распределения радиоактивных аэрозолей	43
1.9. Постановка задач исследования	51
ГЛАВА 2. МЕТОДЫ И СРЕДСТВА ПРОВЕДЕНИЯ ИЗМЕРЕНИЙ	53
2.1. Диффузионная батарея	53
2.2. Каскадные импакторы	56
2.3. Измерение размерного распределения нерадиоактивных аэрозолей	60
2.4. Радиометр БДПА-01	64
2.5. Конструкция камеры для отбора проб аэрозолей ДПР радона	66
ГЛАВА 3. СВОЙСТВА АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ ОТ РАЗЛИЧНЫХ БЫТОВЫХ ИСТОЧНИКОВ	68

3.1. Характеристики исследуемых источников аэрозолей	68
3.2. Динамика изменения концентрации аэрозольных частиц от различных источников	70
3.3. Динамика изменения распределения аэрозольных частиц от различных источников по массе	73
3.4. Закономерности и динамика присоединения продуктов распада радона к аэрозольным частицам от различных источников	77
ГЛАВА 4. ИЗУЧЕНИЕ ФАКТОРОВ, ВЛИЯЮЩИХ НА УЛАВЛИВАНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ ФИЛЬТРАМИ ПЕТРЯНОВА	87
4.1. Характеристики атмосферы при изучении взаимодействия аэрозолей с материалами фильтров	87
4.2. Влияние концентрации аэрозольных частиц на сдвиг равновесия в цепочке распада дочерних продуктов распада радона	95
4.3. Изучение радиометрической эффективности фильтров Петрянова при различных условиях	103
4.4. Изучение проницаемости радиоактивных аэрозолей через фильтры Петрянова	112
4.5. Изучение проницаемости нерадиоактивных аэрозолей через фильтры Петрянова	121
ГЛАВА 5. УНИВЕРСАЛЬНОЕ УСТРОЙСТВО ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ РАЗМЕРНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ	125
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	136
СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ	138
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	140

## **ВВЕДЕНИЕ**

### **Актуальность темы**

Аэрозоли окружают человека всю его жизнь – от первого до последнего вдоха, поэтому вопросы, связанные с образованием и поведением аэрозолей, их свойствами, методами исследований, их воздействием на окружающую среду и человека, всегда представляли большой теоретический и практический интерес. Это не могло не отразиться на значительном количестве научных публикаций и монографий, посвященных данным вопросам. Наиболее фундаментальными обзорными работами, посвященными основам физики и механики аэрозолей, несомненно, являются работы Н. А. Фукса [1, 2]. Эти работы, легшие в основу всех современных теорий поведения аэрозолей при различных условиях, принципов методов измерения характеристик аэрозолей и т. д., не потеряли своей актуальности и по сей день.

Развитие теоретических подходов, а главное, развитие экспериментальных методов исследования обычных аэрозолей и изучение их характеристик и результатов воздействия на человека и окружающую среду нашли свое отражение в многочисленных монографиях последних лет [3–6]. Особое место в физике аэрозолей занимают радиоактивные аэрозоли. Анализ радиоактивных аэрозолей занимает особое место по нескольким причинам. Во-первых, размерное распределение аэрозолей по активности может существенно отличаться от распределения аэрозолей по количеству частиц, их удельной поверхности или массе. Во-вторых, наличие в составе аэрозолей радиоактивных веществ существенно повышает диапазон аналитических средств измерений. В ряде случаев появляются дополнительные возможности анализа размерного распределения аэрозолей или их поведения, недоступные для стандартных методов, используемых для нерадиоактивных аэрозолей. Рассмотрение характерных особенностей поведения и метрологии радиоактивных аэрозолей нашло свое отражение в работах [7–11].

Особое место в изучении поведения радиоактивных аэрозолей занимают исследования свойств дочерних продуктов распада (ДПР) изотопов радона  $^{222}\text{Rn}$  и  $^{220}\text{Rn}$  (торон). Причин этому несколько. Прежде всего необходимо отметить общеизвестные истины. Радиоактивный газ радон – постоянный природный спутник человечества. Проблема облучения персонала и населения за счет природных источников ионизирующего излучения представляет значительный интерес в связи с тем, что данные источники вносят основной вклад в формирование суммарной эффективной дозы облучения населения [12, 13]. За счет ингаляционного поступления радона и продуктов его распада создается более половины общей дозы облучения населения от природных источников излучения. Всемирная организация здравоохранения (ВОЗ) признала, что радон является второй после курения причиной возникновения рака легкого [14]. Основное радиационное воздействие на человека обусловлено не столько инертным газом радоном, сколько откладывающимися в респираторном тракте его продуктами распада в виде радиоактивных аэрозолей. Ряд вопросов, связанных со спецификой поведения и метрологии радиоактивных аэрозолей, содержащих ДПР радона и торона, рассмотрены в монографиях [15–18].

Вместе с тем, до настоящего времени нет достаточного объема научной информации по характеристикам (размерное распределение, динамика во времени и др.) значительного количества бытовых источников аэрозольных частиц, начиная от традиционных источников, таких как термическая обработка пищи при высокой температуре (жарка, запекание и т. д.), курение, использование свечей, благовоний или противомоскитных средств, до относительно новых источников, таких как электронные сигареты или курительные устройства IQOS.

Существует широкий ассортимент различных аэрозольных фильтров, но до сих пор не до конца изучены характеристики проницаемости данных фильтров (в первую очередь для радиоактивных аэрозолей) в зависимости от типа фильтра и условий отбора проб. Особый интерес представляют случаи

отбора проб радиоактивных ДПР радона, поскольку для них характерен мультимодальный характер размерного распределения активности в широком диапазоне размеров аэрозольных частиц.

Отдельную задачу, имеющую как научную, так и практическую значимость, представляет разработка средств измерения размерного распределения активности аэрозолей, позволяющих одновременно определять мультимодальное распределение активности в широком диапазоне, соответствующем респирабельной фракции аэрозолей (0,5 нм – 20 мкм) без предварительной информации о дисперсности радиоактивных аэрозолей.

### **Степень разработанности темы исследования**

Сегодня имеется достаточно хорошее понимание физики аэрозолей, их характеристик и процессов их взаимодействия со взвешенными частицами, газовой фазой, поверхностями и т. д. Созданы различные фильтрующие материалы, позволяющие эффективно улавливать аэрозольные частицы, находящиеся в воздухе. Разработаны средства измерения размерного распределения радиоактивных аэрозолей в различных диапазонах респирабельной фракции от 0,5–1 нм до 20–30 мкм. Вместе с тем имеется ряд задач, требующих более глубокой научной проработки.

Так, отсутствует детальная информация по характеристикам бытовых источников аэрозолей, оказывающих влияние на человека. Необходимо определение размерного распределения аэрозолей от данных источников, ответственных за токсическое действие на человека. Кроме того, существует радиационное их воздействие вследствие взаимодействия аэрозольных частиц с ДПР радона, присутствующих в любой атмосфере. Также нет достаточной информации по эффективности улавливания радиоактивных аэрозолей фильтрами Петрянова в условиях мультимодального распределения активности. Существующие средства измерений размерного распределения радиоактивных аэрозолей имеют ограниченные диапазоны регистрации и в

ряде случаев требуют дополнительной предварительной информации об ожидаемом размерном распределении радиоактивных аэрозолей.

**Объектом исследования** является газоздушная смесь, содержащая газ  $^{222}\text{Rn}$ , короткоживущие продукты его распада  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  ( $^{214}\text{Po}$ ) и неактивные аэрозольные частицы в широком диапазоне их концентраций и размеров.

**Предметом исследования** являются радиоактивные и нерадиоактивные аэрозоли, аналитические аэрозольные фильтры, технические устройства для определения размерного распределения радиоактивных аэрозолей.

### **Цель работы**

Цель исследования состоит в изучении характеристик взаимодействия продуктов распада радона с нерадиоактивными аэрозолями и аэрозольными фильтрами для разработки универсальных средств измерения размерного распределения радиоактивных аэрозолей.

### **Задачи исследования**

1. Изучение размерного распределения и динамики изменения концентрации частиц и их характеристик во время работы различных источников аэрозолей и после прекращения их работы аэрозольных частиц
2. Анализ взаимодействия аэрозолей от искусственных источников с продуктами распада радона для оценки распределения активности ДПР радона по размерам;
3. Определение доминирующих размеров частиц от искусственных источников, вносящих максимальный вклад в радиационную и токсическую нагрузку на человека.
4. Изучение взаимодействия радиоактивных аэрозолей ДПР радона с материалами аэрозольных фильтров при мультимодальном распределении активности и различных режимах фильтрации.
5. Разработка универсального устройства, позволяющего определить размерное распределение радиоактивных аэрозолей без предварительной

информации об их источниках и характеристиках (задача «черного ящика»).

### **Научная новизна**

1. Для искусственных источников аэрозолей показано, что частицы, дающие максимальный вклад в токсическое действие аэрозолей и радиационное воздействие за счет присоединения к аэрозольным частицам продуктов распада радона, относятся к различным размерным группам, отлагающимся в различных отделах респираторного тракта.
2. Показано, что эффективность улавливания фильтрами Петрянова радиоактивных аэрозолей ДПР радона определяется мультимодальным характером их размерного распределения по активности.
3. Предложен, научно обоснован и исследован метод определения размерного распределения радиоактивных аэрозолей в диапазоне 0,5 нм – 20 мкм при единичном отборе пробы без предварительной информации об ожидаемом размерном распределении активности аэрозолей.

### **Теоретическая и практическая значимость исследования**

1. Показано, что в распределении аэрозольных частиц от высокотемпературных бытовых источников по массе доминируют частицы в диапазоне 2–10 мкм с максимумом распределения преимущественно в области 2–5 мкм. Медианный диаметр радиоактивных аэрозолей, содержащих ДПР радона при функционировании высокотемпературных источников аэрозолей, в среднем составляет 130 нм.
2. Показано, что использование продуктов распада радона со специфичным для этих аэрозолей мультимодальным распределением позволяет изучать проницаемость аэрозольных фильтров в области АМТД 1–20 нм, практически недоступной для других методов.
3. Продемонстрировано, что для различных типов фильтров на основе ткани Петрянова различие в эффективности улавливания обусловлено



различиями в их структуре и наличием или отсутствием электростатического осаждения аэрозолей на волокнах фильтра.

4. Фильтры на основе ткани Петрянова имеют высокую эффективность для ультрадисперсных мод ДПР радона с АМТД  $\sim 1$  нм и проникающих частиц, с размером более 200 нм. Частицы, относящиеся к моде Айткена (АМТД  $\sim 20$  нм), образующиеся в процессе нуклеации неприсоединенных ДПР радона, обладают проницаемостью по 50 %.

5. Разработана комбинированная система для изучения распределения радиоактивных аэрозолей по размерам в диапазоне от 0,5 нм до 20 мкм, включающая в себя элементы, функционирующие на различных физических принципах улавливания аэрозолей.

#### **Методология и методы исследований**

Используются теоретические и экспериментальные методы исследования. В качестве основного экспериментального метода исследования в диссертационной работе использованы измерение размерного распределения нерадиоактивных и радиоактивных аэрозолей в атмосфере с различными концентрациями аэрозольных частиц, а также изучение проницаемости аналитических фильтров для аэрозолей.

#### **Положения, выносимые на защиту**

1. Для высокотемпературных бытовых источников аэрозолей радиационное воздействие за счет присоединением ДПР радона обусловлено частицами с медианным диаметром 130 нм, а токсическое действие – частицами в диапазоне 2–5 мкм.

2. Эффективность фильтров Петрянова для аэрозолей ДПР радона обусловлена процессами образования неприсоединенных продуктов распада и их взаимодействием с аэрозолями, относящимся к модам Айткена и аккумуляции, имеющих различную проницаемость через фильтр.

3. Комбинированная система, состоящая из последовательно соединенных диффузионной батареи, каскадного импактора и многослойного пакета

фильтров, позволяет определить размерное распределение активности в диапазоне от 0,5 нм до 20 мкм при единичном отборе проб и отсутствии предварительной информации об ожидаемой дисперсности аэрозолей.

### **Достоверность полученных результатов**

Достоверность полученных результатов обеспечивается научной обоснованностью исходных положений, лежащих в основе методов определения ЭРОА радона, их соответствием законам радиоактивного распада, использованием современных средств измерений, внесенных в Госреестр средств измерений, хорошей воспроизводимостью данных измерений и использованием современных методов статистической обработки результатов экспериментальных исследований.

### **Рекомендации по использованию полученных результатов**

Результаты изучения размерного распределения аэрозолей от бытовых источников могут быть использованы для уточнения дозиметрических оценок внутреннего облучения от ассоциированных с ними ДПР радона, а также для оценки поведения токсических продуктов горения, образующихся при эксплуатации таких источников, в организме человека. Результаты изучения характеристик фильтров Петрянова при регистрации радиоактивных аэрозолей продуктов распада радона позволят более корректно интерпретировать результаты радиометрических измерений для немонодисперсных распределений активности. Разработанная универсальная система определения размерного распределения аэрозолей может найти применение при измерениях в широком диапазоне диаметров аэрозольных частиц (0,5 нм – 20 мкм) без предварительной информации об ожидаемом размерном распределении активности при единичном отборе пробы.

### **Апробация работы**

Результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях: III International Youth Scientific Conference Innovations. Physics. Technologies. IPT-2016 May 16–20, 2016, Ekaterinburg,

Russia; IV International Youth Scientific Conference Innovations. Physics. Technologies. IPT-2017 May 15–19, 2017, Ekaterinburg, Russia; Sixth International Youth Scientific Conference Innovations. Physics. Technologies. IPT-2018 May 17-21, 2018, Ekaterinburg, Russia; Sixth International Conference on Radiation and Applications in Various Fields of Research (RAD 2018) in Ohrid, Macedonia; 10<sup>th</sup> International Aerosol Conference (IAC 2018) at the America's Center in St. Louis, Missouri, USA; «International School and Conference "Saint-Petersburg OPEN 2019" on Optoelectronics, Photonics, Engineering and Nanostructures» (международная школа-конференция по оптоэлектронике, фотонике, инженерии и наноструктурам); Sixth International Young Researchers' Conference Physics. Technologies. Innovation. dedicated to the 70<sup>th</sup> anniversary of the Institute of Physics and Technology PTI-2019 May 20–24, 2019, Ekaterinburg; The International Conference «High-tech and Innovations in Research and Manufacturing (HIRM-2019)» at AeroSpace school, IT Lab, Krasnoyarsk, Russia; Seventh International Conference on Radiation in Various Fields of Research (RAD 7 2019 Conference), Herceg Novi, Montenegro; 9<sup>th</sup> International Conference on Protection against Radon at Home and at Work, September 16–20, 2019, Prague; Конференция «Биосферная совместимость атомной энергетики», Екатеринбург, 2020.

### **Публикации**

По теме диссертационной работы имеется 10 публикаций, входящих в систему индексирования Web of Science и Scopus.

### **Структура и объем работы**

Диссертация состоит из введения, пяти глав, выводов, списка сокращений, списка использованных источников из 129 наименований. Работа изложена на 153 страницах, содержит 16 таблиц и 55 рисунков.

## ГЛАВА 1. АЭРОЗОЛИ, ИХ СВОЙСТВА И МЕТОДЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ

### 1.1. Общая характеристика аэрозолей

Термин «аэрозоли» появился более 90 лет назад около 1920 г. по аналогии с термином «гидрозоль», обозначающим устойчивую суспензию твердых частиц в жидкости [3]. Он означает взвешенные в газообразной среде твердые или жидкие частицы с пренебрежимо малой скоростью гравитационного оседания. В классической работе [1] определение аэрозолей или аэродисперсных систем дано как «дисперсные системы с газообразной средой и с твердой или жидкой дисперсной фазой». Предлагалось различать аэрозоли по их происхождению – конденсационные или дисперсионные, а также по их агрегатному состоянию – твердой или жидкой дисперсной фазе. Аэрозоль в простейшей форме включает в себя широкий спектр явлений, таких как пыль, дым, туман, дымка и смог [19]. При нормальных условиях в атмосфере аэрозоли представлены частицами менее 100 мкм, и в основном размеры аэрозолей лежат в диапазоне от нескольких нанометров до десятков микрометров. На рис. 1.1 представлены типичные размеры аэрозольных частиц различного происхождения [20]. К аэрозолям по определению относятся как частицы, так и газ, в котором эти частицы взвешены. Однако, в результате часто встречающегося непонимания, термин «аэрозоли» ошибочно используется как синоним термина «частицы».

*Аэрозоли в открытой атмосфере.* Частицы аэрозоля могут быть либо непосредственно выброшены в атмосферу, либо образованы там в результате реакций с газами-прекурсорами, такими как диоксид серы, оксиды азота и летучие органические соединения (ЛОС), когда образующиеся продукты реакции образуют новые частицы или конденсируются на уже существующих ранее частицах. Частицы, образующиеся по этим двум путям, называют соответственно первичными или вторичными [19].

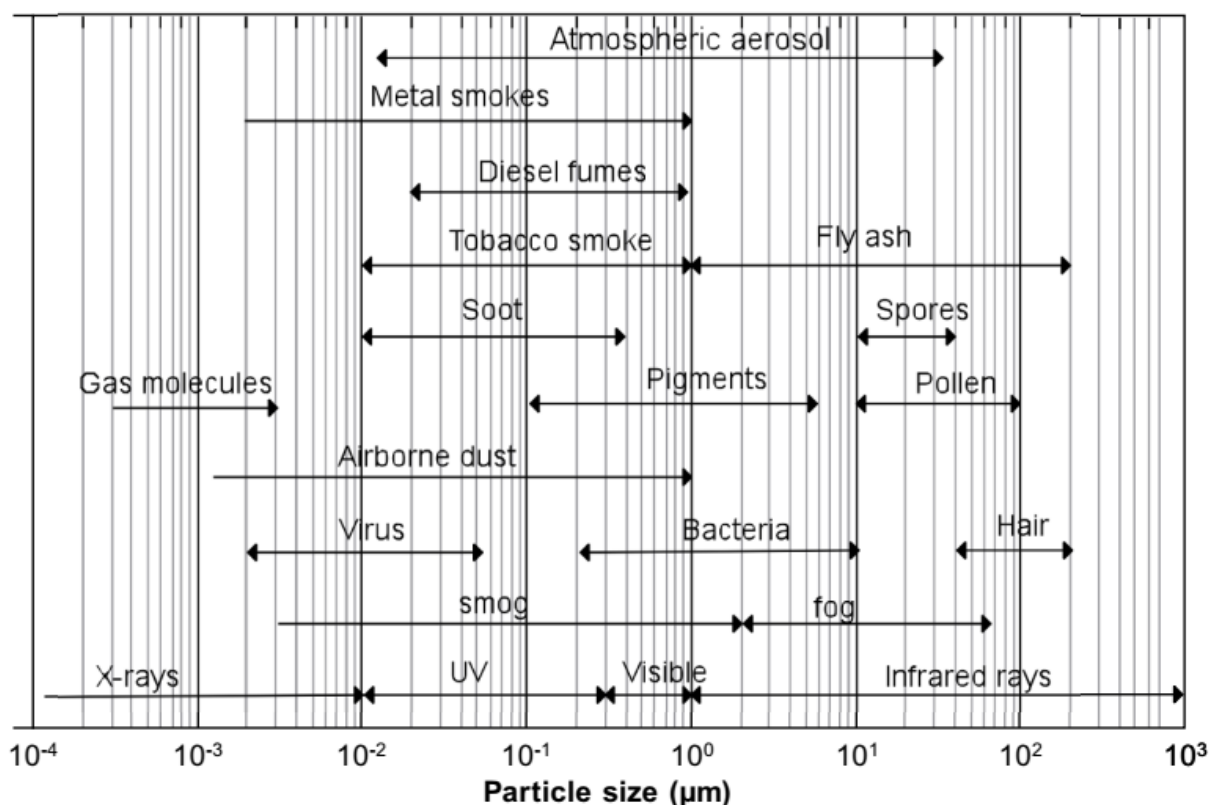


Рис. 1.1. Типичные размеры аэрозольных частиц различного происхождения

Частицы в воздухе образуются как из природных источников, так и в результате антропогенной деятельности. Первый источник включает в себя переносимую ветром пыль, морские брызги, вулканическую деятельность и сгорание биомассы, в то время как выбросы частиц, связанные с деятельностью человека, происходят в основном из четырех категорий источников: сжигание топлива, промышленные процессы, неорганизованные источники (например, строительные работы) и транспортные источники (например, автомобили). Наиболее вероятно, что природные аэрозоли в глобальном масштабе превышают в 4–5 раз антропогенные, но региональные различия в антропогенном загрязнении могут значительно изменить это соотношение в определенных областях, особенно в промышленно развитом Северном полушарии [19]. В воздухе частицы могут изменять свой размер и состав путем конденсации пара или, наоборот, испарения, коагуляции с другими частицами, химической реакции или нуклеации в присутствии

перенасыщенных паров воды, превращаясь в туман и капельки облаков. Частицы в конечном итоге удаляются из атмосферы с помощью двух механизмов: осаждения на поверхность земли (сухое осаждение) и включения их в капли воды во время образования осадков (мокрое осаждение). Поскольку влажное и сухое осаждение приводит к относительно короткому времени пребывания частиц в тропосфере, а географическое распределение их источников весьма неоднородно, то тропосферные аэрозоли сильно различаются по концентрации и составу. Принимая во внимание, что время жизни атмосферных следовых газов лежит в диапазоне от долей секунды до столетия или более, то время пребывания частиц в тропосфере варьируется от нескольких дней до нескольких недель.

*Аэрозоли в помещении.* Люди обычно проводят большую часть своего времени в различных помещениях, таких как дома, рабочие места и общественные места (торговые центры, кинотеатры, рестораны и др.). Начиная с середины 1970-х г. было обнаружено, что концентрация некоторых веществ в помещении может быть выше, чем на открытом воздухе [21, 22].

В последние годы воздействие мелких и ультрадисперсных частиц в воздухе было определено как важный фактор, влияющий на здоровье человека [23–27]. Осознание влияния на здоровье взвешенных частиц в воздухе, в частности мелких и ультрадисперсных частиц (УДЧ), увеличивается. Это связано с тем, что ультрадисперсные частицы могут проникать глубже в дыхательную систему и из-за их высокого коэффициента диффузии осаждаются там с большей вероятностью, чем более крупные частицы. Однако вклад ультрадисперсных частиц в общую массовую концентрацию частиц незначителен по сравнению с численной концентрацией [28]. Другими словами, когда оценивается масса частиц, ультрадисперсной фракцией практически пренебрегают, что не может считаться корректным, поскольку на значимость этой фракции неоднократно указывалось в последние годы. Тем не менее вопрос о том, должны ли концентрации частиц, чтобы наилучшим образом соотноситься с возможным воздействием на здоровье человека, быть

выражены в виде массы, количества или площади их поверхности, остается открытым.

Продукты сгорания являются основными источниками газообразных и твердых частиц в помещении. Эти продукты включают в себя табачный дым, продукты сгорания ископаемого топлива, используемого для приготовления пищи и обогрева помещений, дым от противомоскитных средств и дым от ладана и благовоний, традиционно применяемых в различных странах [29]. Дым источников горения внутри помещений является одной из самых старых проблем качества воздуха жилой зоны. В литературе имеется информация о ряде исследований по распределению частиц табачного дыма по размеру и изменения характеристик данного распределения во времени [22].

Понимание рисков, связанных с воздействием электронных сигарет (ЭС), стало актуальным из-за их растущего использования и потенциальных токсикологических последствий таких воздействий [30]. Глобальные продажи ЭС достигли 6 млрд долл. в 2014 году и, по прогнозам, достигнут 32 млрд долл. в 2021 г. [31].

Хотя восковые или парафиновые свечи регулярно используются для эстетических целей, а также для освещения в домах и ресторанах, информации о выбросах аэрозольных частиц при горении свечей недостаточно [21]. Частицы сажи от свечей, размером от 0,03 до 3 мкм могут оставаться в воздухе в течение длительного времени [27].

Горящий ладан или другие благовония – обычная практика в некоторых странах, традиционно используемая для поклонения предкам и божествам в даосизме и буддизме. Фактически воскурение ладана в течение нескольких часов в день распространено и в ряде домашних хозяйств. Известно, что при горении ладана, при неполном процессе сгорания, выделяются мелкие и ультрадисперсные частицы в больших количествах [32, 33]. Некоторые аспекты воскурения благовоний имеют общие черты с поведением табачного дыма в помещении [29].

Несмотря на тот факт, что дым, производимый средствами от комаров, может иметь много потенциальных неблагоприятных последствий для здоровья, большие группы населения в развивающихся странах по-прежнему используют тлеющие противомоскитные спирали в своей повседневной жизни. Дымовая спираль от комаров содержит некоторые карбонильные соединения, обладающие свойствами, которые могут оказывать сильное раздражающее воздействие на верхние дыхательные пути, например, формальдегид и ацетальдегид [34]. Поскольку потребители данных средств обычно используют противомоскитные спирали в течение нескольких месяцев в году как минимум, то кумулятивные эффекты длительного воздействия дыма от противомоскитных спиралей могут быть существенной проблемой [35].

## 1.2. Классификация частиц по размерам

Аэрозоли обычно характеризуют таким понятием, как диаметр, неявно подразумевая, что они являются сферическими. Однако частицы в воздухе имеют широко варьируемые формы, для которых понятие геометрического диаметра часто не имеет смысла. Существует ряд способов описания размеров таких частиц, поскольку многие важные свойства частиц, такие как объем, масса и скорость, зависят от их размера [1–3]. На практике размер таких частиц неправильной формы выражается через эквивалентный диаметр, который зависит от физических, а не геометрических свойств аэрозольной частицы. Эквивалентный диаметр определяется как диаметр сферы единичной плотности, которая будет иметь то же значение конкретного физического параметра, что и частица неправильной формы с иной плотностью. Существуют разные типы эквивалентных диаметров.

*Аэродинамический диаметр* ( $d_{ad}$ ) – диаметр сферической частицы единичной плотности ( $1 \text{ г}\cdot\text{см}^{-3}$ ), имеющий такую же скорость гравитационного осаждения, как и рассматриваемая аэрозольная частица. Аэродинамический диаметр стандартизирует частицы различной формы и плотности в сферах,



имеющих одинаковые аэродинамические свойства, скорость оседания. Аэродинамический диаметр частицы  $d_{ad}$  определяется уравнением 1.1.

$$d_{ad} = d_g k \sqrt{\frac{\rho_p}{\rho_0}}, \quad (1.1)$$

где  $d_g$  – геометрический диаметр частицы;  $\rho_p$  – плотность частицы;  $\rho_0$  – стандартная плотность 1 г/см<sup>3</sup>;  $k$  – коэффициент, учитывающий форму частицы (для сферы  $k=1$ ).

Из-за влияния плотности частиц на аэродинамический диаметр сферическая частица высокой плотности будет иметь больший аэродинамический диаметр, чем ее геометрический диаметр. Поскольку для большинства веществ плотность составляет менее 10 г/см<sup>3</sup>, то разница между геометрическим и аэродинамическим диаметрами сферической частицы составляет менее ~ 3.

Аэродинамический диаметр используется для частиц с эквивалентным диаметром более 0,5 мкм, когда гравитационное осаждение является доминирующим. Для частиц меньшего размера более приемлемым является такой эквивалентный диаметр, как термодинамический.

**Термодинамический диаметр ( $d_{th}$ )** – диаметр сферической частицы, который имеет такой же коэффициент диффузии в воздухе, что и рассматриваемая аэрозольная частица.

Для описания размерного распределения радиоактивных аэрозолей используются такие параметры, как медианный по активности аэродинамический и медианный по активности термодинамический диаметры.

**Медианный по активности аэродинамический диаметр (АМАД)** – характеристика статистического распределения активности полидисперсного аэрозоля по аэродинамическому диаметру  $d_{ad}$ . Половина активности рассматриваемого аэрозоля ассоциирована с частицами, которые имеют  $d_{ad}$  больший, чем АМАД. Применяется, когда доминирующими механизмами,

определяющими отложение в органах дыхания, является инерционное и гравитационное осаждение, как правило, при АМАД, более 0,5 мкм. При отсутствии фактических данных предполагается логнормальное распределение частиц.

*Медианный по активности термодинамический диаметр (АМТД)* – характеристика статистического распределения активности полидисперсного аэрозоля по термодинамическому диаметру  $d_{th}$ . Половина рассматриваемой активности ассоциирована с частицами, которые имеют  $d_{th}$  больший, чем АМТД. Применяется, когда диффузия является доминирующим механизмом, определяющим отложение в дыхательной системе, как правило, при АМТД менее 0,5 мкм.

Важно отметить, что различные типы аэрозольных приборов могут давать различные значения диаметра одних и тех же частиц в зависимости от применяемой методики измерений и физического параметра, используемого для сравнения частиц. Следовательно, универсальной меры размера частиц аэрозоля не существует, и поэтому в данной работе всегда будет оговариваться способ определения диаметра частиц.

Размер частиц является одним из наиболее важных параметров для характеристики поведения аэрозолей. Эффективные диаметры атмосферных аэрозолей охватывают более четырех порядков, от единиц нанометров до ~100 мкм. Чтобы оценить столь широкий диапазон размеров, нужно учитывать, что масса частицы диаметром 10 мкм эквивалентна массе одного миллиарда частиц размером 10 нм того же состава. Атмосферные аэрозоли обычно классифицируются на отдельные виды в зависимости от их размера, процесса образования и возраста. В литературе границы этих диапазонов варьируются. На основании распределений аэрозольных частиц по концентрации, удельной поверхности и объему, показанных на рис. 1.2, можно выделить четыре отдельные группы атмосферных частиц.

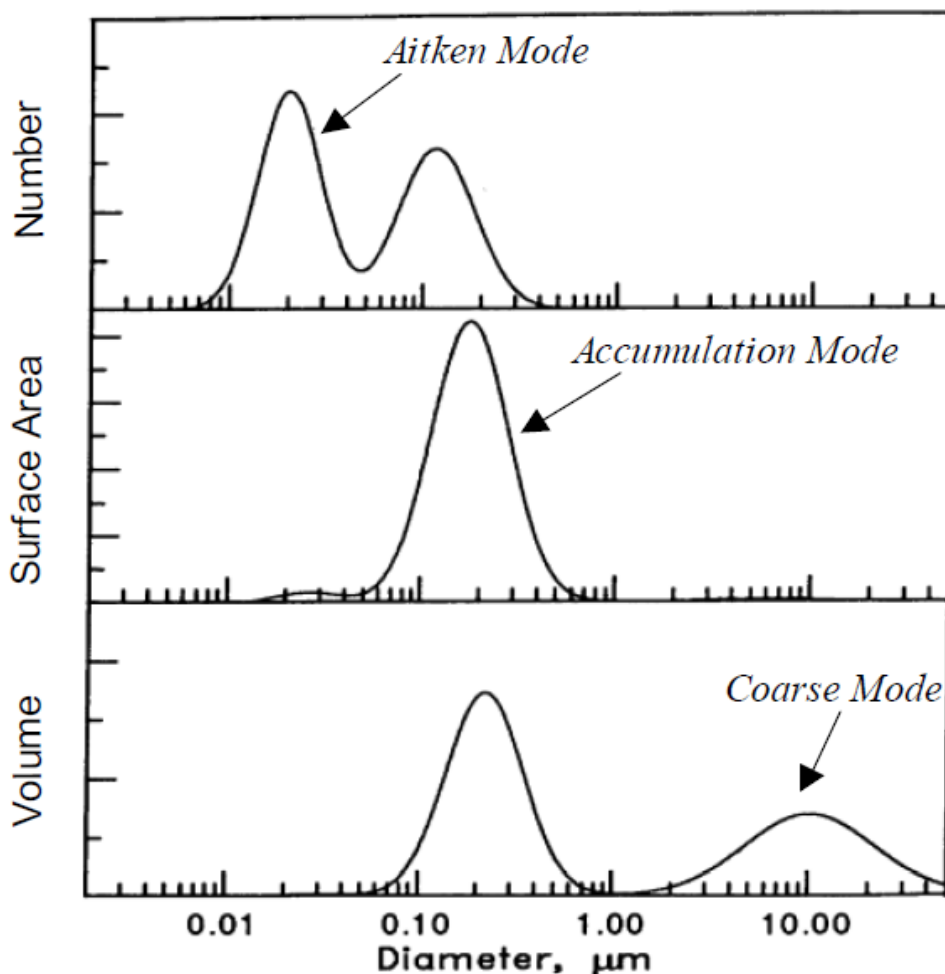


Рис. 1.2. Распределение типичного городского аэрозоля по концентрации, удельной поверхности и объему [19]

Частицы с диаметром более 1,0 мкм идентифицируются как крупнодисперсная мода. Эти частицы в основном образуются в результате механических процессов и попадают непосредственно в атмосферу как из природных, так и из антропогенных источников. Весьма значимым источником являются пузырьки соленой воды в океане, которые лопаясь, создают крупные частицы морской соли. Ветер также поднимает пыль, почву и биологические частицы и задерживает их в атмосфере. Крупные антропогенные частицы попадают в атмосферу в результате движения автотранспорта, а также при промышленных и сельскохозяйственных процессах. Из-за своего относительно большого размера крупные частицы оседают из атмосферы в течение достаточно короткого времени путем

седиментации, за исключением ветреных дней, когда выпадение уравнивается вторичным подъемом.

Частицы с диаметром от 0,1 до 1,0 мкм рассматриваются как мода аккумуляции, представляющая область роста частиц, главным образом из-за коагуляции частиц с диаметром менее 0,1 мкм и от конденсации паров на существующих частицах, что приводит к увеличению их размеров. Частицы в этом диапазоне размеров могут также непосредственно попадать в атмосферу за счет неполного сгорания древесины, нефти, угля, бензина и других видов топлива. Из-за природы своих источников частицы моды аккумуляции обычно содержат значительные количества органического материала, а также растворимых неорганических веществ, таких как аммоний, нитрат и сульфат. Мода аккумуляции названа так потому, что для нее механизмы удаления частиц наименее эффективны, что приводит к накоплению частиц до тех пор, пока они не будут удалены под действием дождя или других форм осадков (влажное осаждение).

Частицы в моду Айткена, диаметром от 0,01 до 0,1 мкм, образуются в результате конверсии газообразных веществ в частицы при температуре окружающей среды, а также в результате конденсации горячих паров в процессе горения. Эти частицы действуют как ядра конденсации газообразных веществ с низким давлением паров, что приводит к их росту и переходу в моду аккумуляции. Время жизни этих частиц короткое, поскольку они исчезают главным образом из-за коагуляции с более крупными частицами. Частицы Айткена и моды аккумуляции в целом относятся к мелкодисперсным частицам.

Последний тип частиц – это частицы диаметром менее 0,01 мкм (на рис. 1.2 не показаны), известные как ультрадисперсные частицы. Считается, что они генерируются в процессах превращения газа в частицы, которые еще недостаточно изучены на молекулярном уровне. Из-за их очень малого размера и массы их трудно изучать с помощью доступных методов измерения. Эти частицы были обнаружены в очень больших количествах при наличии

биогенных или антропогенных выбросов во многих различных средах, включая леса [36] и прибрежные зоны [37]. Частицы таких размеров относят к моду нуклеации. Эти частицы наблюдаются только как отдельная мода и имеют очень короткое время жизни, иногда порядка нескольких минут, из-за их быстрой коагуляции или хаотичного оседания на поверхности, обусловленного броуновским движением.

На частицы в модах нуклеации и Айткена приходится большинство атмосферных частиц по количеству, но из-за их малых размеров они редко составляют более нескольких процентов от общей массы. Следовательно, если окажется, что токсикологические эффекты определяются главным образом количеством частиц, а не их массой, то эти малые частицы могут в конечном итоге оказаться очень важными. Частицы в моде аккумуляции обычно составляют значительную долю от общей массы аэрозоля и имеют наибольшую площадь поверхности. Это делает эти частицы очень важными для газофазного осаждения и гетерогенной химии атмосферы.

Большая часть массы аэрозоля находится в крупнодисперсной моде, где крупные частицы вносят значительный вклад в оптические свойства атмосферных аэрозолей. Рассмотренные выше моды, как правило, возникают отдельно, трансформируются изолированно и удаляются из атмосферы разными механизмами. Частицы имеют различное время жизни, различный химический состав, разные оптические свойства и значительно различаются по своим схемам осаждения в дыхательных путях. Поэтому различия между зародышеобразованием, модой Айткена, модой аккумуляции и крупнодисперсными частицами являются основополагающими при описании физических, химических процессах и физиологического влияния на здоровье.

### **1.3. Другие характеристики аэрозолей и их влияние на здоровье человека**

Концентрация аэрозоля чаще всего указывается в терминах массы или количества частиц в единице объема аэрозоля. Общепринятыми единицами

являются  $\text{мкг}\cdot\text{м}^{-3}$  или  $\text{см}^{-3}$  соответственно. Массовая концентрация эквивалентна плотности аэрозоля, но данный термин не используется, чтобы избежать путаницы с плотностью частиц. Многие эффекты атмосферных аэрозолей (например, радиационный эффект) зависят от их химического состава, который редко состоит исключительно из одного компонента.

Атмосферные аэрозоли, как правило, состоят из смеси аэрозолей из различных источников. Состояние перемешивания, то есть то, как все компоненты распределены среди частиц, является одним из важных свойств атмосферных аэрозолей. В аэрозольной популяции частицы могут иметь внешнее перемешивание, если они образованы разными источниками и имеют различный химический состав. С другой стороны, частицы могут иметь внутреннее перемешивание, когда все частицы содержат однородную смесь компонентов.

Еще одним свойством, характеризующим аэрозоли, является форма аэрозольной частицы. Форма частицы может влиять на ее площадь поверхности, аэродинамическое поведение и оптические свойства. Исследования с помощью сканирующей электронной микроскопии показали, что жидкие аэрозольные частицы в атмосфере почти всегда являются сферическими, а твердые частицы обычно имеют переменную форму: кристаллическую, агрегатную, фрактальную и аморфную [3].

Частицы аэрозоля оказывают большое влияние на глобальный климат [38]. Они рассеивают и поглощают излучение [39], а также являются ключевым компонентом, определяющим микрофизические и, следовательно, радиационные свойства облаков [40]. Антропогенные выбросы аэрозоля могут воздействовать на климат, хотя уровень этого влияния является весьма неопределенным [38, 41]. Кроме того, аэрозольные частицы ответственны за перенос радиоактивных и химических элементов, токсичных газов и микроорганизмов, таких как бактерии и грибы. Следовательно, аэрозольные частицы являются одним из наиболее важных загрязняющих веществ, влияющих на здоровье человека. Эти воздействия могут варьироваться от

незначительных биохимических и физиологических изменений до серьезных: затрудненного дыхания, хрипов, кашля и обострения существующих респираторных и сердечных заболеваний [19].

#### 1.4. Радиоактивные аэрозоли

Радиоактивные аэрозоли можно классифицировать по следующим категориям:

1. аэрозоли продуктов распада радона и торона, связанные с  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{216}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ ;
2. радиоактивные аэрозоли, связанные с радиоактивными нуклидами космогенного происхождения, такими как  $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{32}\text{P}$  и  $^{35}\text{S}$ ;
3. радиоактивные аэрозоли продуктов деления, связанные с  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{140}\text{Ba}$  и др.;
4. радиоактивные аэрозоли, такие как  $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{24}\text{Na}$  и  $^{52}\text{Mn}$ , связанные с работой ускорителей высокой энергии,
5. аэрозоли плутония, вызванные испытаниями ядерного оружия или авариями на ядерных реакторах;
6. шахтные аэрозоли.

Механизмы возникновения радиоактивных аэрозолей могут быть точно такими же, как и у стабильных аэрозолей. По механизму возникновения различают аэрозоли диспергации и конденсации. Диспергационные аэрозоли появляются при разбрызгивании жидкостей, измельчении твердых тел, взмучивании порошков и т. п., а конденсационные аэрозоли – при конденсации паров воды, металлов и их окислов и др. Вместе с тем, помимо указанных процессов, радиоактивные аэрозоли могут возникать и в результате особых явлений. Так, возможна активация первоначально неактивных частиц под действием нейтронного облучения; при распаде некоторых радиоактивных газов (например, радона, торона) появляются короткоживущие радиоактивные изотопы висмута и полония,

представляющие собой твердые частицы; процесс образования радиоактивных аэрозолей наблюдается у поверхности с  $\alpha$ -активными веществами, когда в результате обратной отдачи из препарата в воздух могут вылетать атомы и увлекаемые ими агрегаты, состоящие из нескольких активных атомов.

Для экспериментального изучения всего спектра свойств радиоактивных аэрозолей, в особенности долгоживущих, необходимо сложное лабораторное оборудование и обеспечение серьезных мер радиационной безопасности. В связи с этим лабораторные исследования с использованием генераторов искусственных аэрозолей представляют существенные технические, юридические и организационные трудности. Значительную часть исследований, связанных с радиоактивными аэрозолями, можно выполнить с использованием аэрозолей короткоживущих продуктов распада радона, не требующих столь строгих мер радиационной безопасности. Поэтому значительная часть настоящей работы будет посвящена проблемам дочерних продуктов распада (ДПР) радона с переходом, при необходимости, к общим проблемам радиоактивных аэрозолей.

### 1.5. Аэрозоли продуктов распада радона и торона

Продукты распада радона, такие как  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Po}$ , обеспечивают гораздо больший вклад в дозу внутреннего облучения, чем сам радон. Доза для дыхательных путей, вызванная продуктами распада радона, зависит от распределения аэрозоля по размерам, вида дыхания (носовой или рото-носовой) и частоты дыхания. Инертные газы радон ( $^{222}\text{Rn}$ ) и торон ( $^{220}\text{Rn}$ ) образуются как продукты распада  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{224}\text{Ra}$  в рядах урана и тория в почве и породах. Они мигрируют из грунта в атмосферу, где распадаются и образуют дочерние продукты распада; радионуклиды полония ( $Z = 84$ ), висмута ( $Z = 83$ ) и свинца ( $Z = 82$ ), которые либо остаются в воздухе до момента распада, либо



осаждаются под действием осадков или путем диффузии на поверхность земли.

Распад  $^{222}\text{Rn}$  и  $^{220}\text{Rn}$  в атмосфере приводит к образованию продуктов распада, которые коагулируют с другими образующимися ядрами или конденсируются на существующих аэрозолях моды аккумуляции. Эти радионуклиды включают  $^{218}\text{Po}$  ( $T_{1/2}=3,05$  мин),  $^{214}\text{Pb}$  (26,8 мин),  $^{214}\text{Bi}$  (19,7 мин),  $^{212}\text{Pb}$  (10,64 ч) и  $^{212}\text{Bi}$  (60,6 мин). Имеется значительное количество публикаций о поведении продуктов распада радона как на открытом воздухе, так и в помещениях (включая жилые помещения) [42–52].

Объемная активность  $^{222}\text{Rn}$  в наружном воздухе и в воздухе помещений составляет около 10 и 40 Бк·м<sup>-3</sup> соответственно. Объемная активность торона  $^{220}\text{Rn}$  в наружном воздухе составляет около 10 Бк·м<sup>-3</sup> и примерно такое же значение наблюдается в помещениях [53, 54]. Средние значения объемной активности продуктов распада радона в наружном воздухе составляют 19,1 Бк·м<sup>-3</sup> для  $^{218}\text{Po}$ , 3,88 Бк·м<sup>-3</sup> для  $^{214}\text{Pb}$ , 5,26 Бк·м<sup>-3</sup> для  $^{214}\text{Bi}$ , 0,5 мБк·м<sup>-3</sup> для  $^{210}\text{Pb}$  и 0,05 мБк·м<sup>-3</sup> для  $^{210}\text{Po}$ . Для продуктов распада торона в наружном воздухе они составляют 0,09–0,5 Бк·м<sup>-3</sup> для  $^{212}\text{Pb}$ .

*Образование аэрозолей продуктов распада радона.* Изолированные радиоактивные атомы могут образовываться в атмосфере при нормальных условиях. Этот процесс связан с радиоактивным распадом благородных газов, в результате которого образуются продукты радиоактивного распада. Наиболее типичными и известными представителями таких газов являются изотопы радона  $^{220}\text{Rn}$  и  $^{222}\text{Rn}$ . При  $\alpha$ -распаде материнского радионуклида  $^{222}\text{Rn}$  или  $^{220}\text{Rn}$  вылетающая частица имеет положительный заряд, и электроны отрываются от исходного атома при ее испускании. Около 85–88 % свободных атомов, образующихся при распаде изотопов радона, заряжены положительно [46]. Продукты радиоактивного распада благородных газов существуют в воздухе в виде свободных атомов в течение очень короткого времени (<1 с) [50]. Свободные атомы, взаимодействуя с микроэлементами и водяным паром,

образуют молекулярные кластеры размером 1–5 нм, (так называемые *неприсоединенные продукты распада*). Во время распада изотопов полония большинство ядер отдачи  $^{212}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Pb}$  также образуются в виде свободных атомов с последующим образованием молекулярных кластеров. Кластеры могут быть нейтральными или положительно заряженными. Необходимо учитывать, что процесс нейтрализации молекулярного кластера неприсоединенных продуктов распада возможен [50].

После образования кластеры, содержащие радионуклиды, присоединяются к существующим аэрозольным частицам в атмосфере в течение 1–100 с, образуя *присоединенные продукты распада*. Форма и размер присоединенных ДПР существенно зависят от характеристик окружающих нерадиоактивных аэрозолей [55].

На рисунке 1.3 представлен механизм образования радиоактивного аэрозоля продуктами распада изотопов радона [56].

Процессы нейтрализации заряженных ионов и взаимодействия неприсоединенных ДПР с частицами аэрозоля описаны в многочисленных публикациях [50, 57-66]. Приведенные в литературе значения коэффициентов диффузии колеблются от 0,01 до 0,1  $\text{см}^2 \cdot \text{с}^{-1}$  [46, 67]. В большинстве предыдущих исследований коэффициента диффузии значение электрического заряда ионов радионуклидов и влияние влажности воздуха не рассматривалось. Нейтрализация ионов радионуклидов зависит от их концентрации и влажности воздуха.

Скорости нейтрализации ионов были определены  $^{218}\text{Po}$  в воздухе с помощью изучения процесса переноса электронов в «нормальном» воздухе с естественными следовыми газами снаружи и внутри помещений. Было обнаружено, что эти скорости малы и ими можно пренебречь при «нормальной» влажности (относительная влажность 30–95 %) и типичных концентрациях радионуклидов [68].

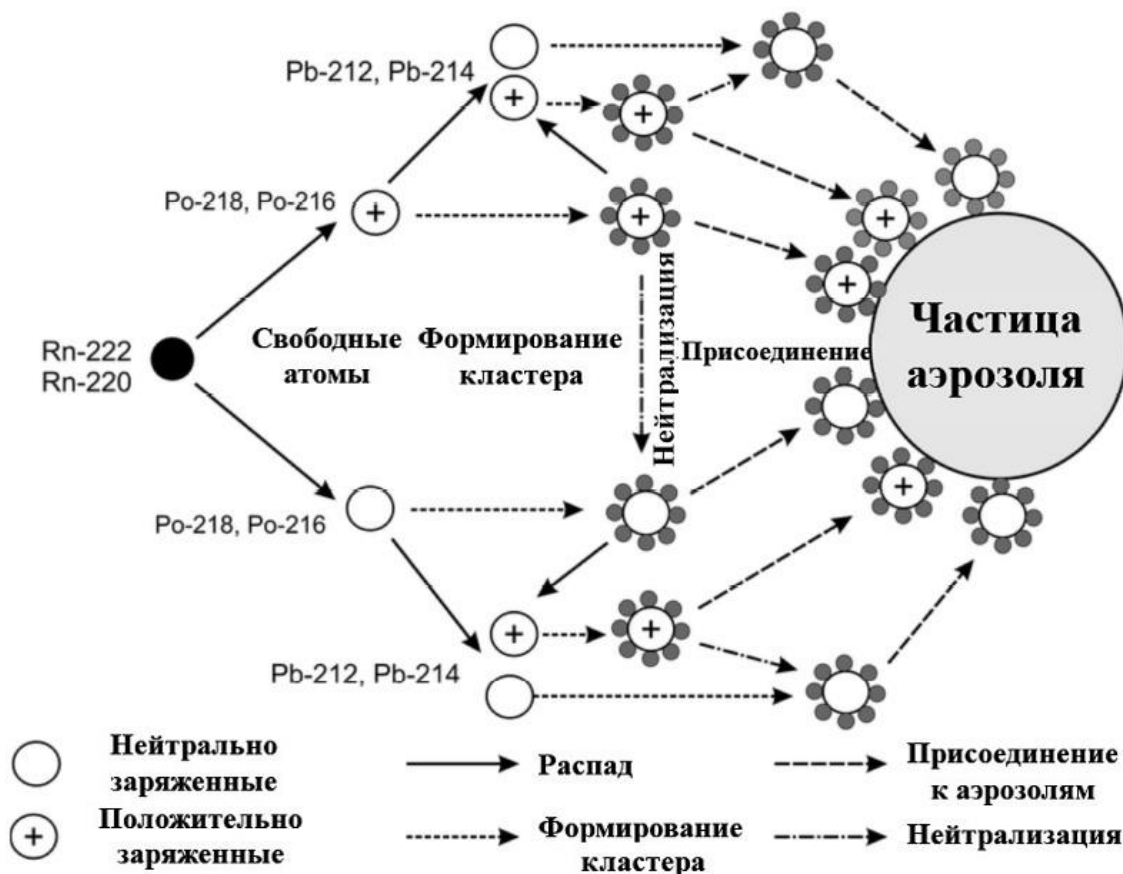


Рис. 1.3. Механизм образования радиоактивных аэрозолей продуктами распада изотопов радона [56]

Значение неприсоединенной фракции (т.е. относительной доли атомов не присоединившихся к аэрозолям) продуктов распада радона  $^{218}\text{Po}$  или торона  $^{212}\text{Pb}$  можно описать уравнением [(61, 64, 69, 70)]

$$f_1 = \frac{\lambda_1 + v + q^a}{\lambda_1 + v + q^a + \bar{X}} = \frac{\lambda_1 + v + q^a}{\lambda_1 + v + q^a + b_A(d)Z}, \quad (1.2)$$

где  $\lambda_1$  – постоянная распада радионуклида, образующего молекулярный кластер неприсоединенной фракции;  $\bar{X}$  – скорость присоединения продуктов распада к аэрозолю;  $v$  – скорость воздухообмена;  $q^a$  – скорость оседания аэрозолей на поверхности;  $Z$  – концентрация аэрозолей;  $b_A(d)$  – коэффициент присоединения, зависящий от диаметра аэрозоля.

Согласно [50] процесс присоединения преимущественно определяется диффузией с учетом электростатических сил и законов кинетики газа. Для наиболее распространенных частиц размером  $0,1 < d < 1,0$  мкм можно применять диффузионную модель, предполагая, что электростатическими силами можно пренебречь и вероятность прилипания продуктов распада на поверхности частиц составляет 100 %.

$$\beta_A(d) = \frac{2\pi D_0 d}{\frac{8D_0}{dv_0} + \frac{d}{d+2l_0}}, \quad (1.3)$$

где  $D_0=6,8 \cdot 10^{-2}$  см<sup>2</sup>·с<sup>-1</sup> – коэффициент диффузии;  $v_0=1,72 \cdot 10^4$  см·с<sup>-1</sup> – средняя тепловая скорость;  $l_0=4,9 \cdot 10^{-6}$  см – средняя длина свободного пробега для неприсоединенных продуктов распада радона. Для частиц малого диаметра ( $d < 0,1$  мкм) процесс присоединения радионуклидов описывается кинетической теорией газов и пропорционален площади поверхности частиц

$$\beta_A(d) = \frac{\pi d^2 v_0}{4}. \quad (1.4)$$

Для крупных аэрозольных частиц ( $d > 1$  мкм) процесс присоединения определяется исключительно диффузионными процессами

$$\beta_A(d) = 2\pi D_0 d. \quad (1.5)$$

Необходимо отметить, что образование изолированных радиоактивных атомов продуктов распада, их трансформация в молекулярные кластеры и последующее присоединение молекулярных кластеров к нерадиоактивным аэрозольным частицам характерно не только для ДПР изотопов радона. Аналогичные процессы имеют место и при  $\beta$ -распаде короткоживущих инертных радиоактивных газов  $^{138}\text{Xe}$  и  $^{88}\text{Kr}$ , в результате которого образуются изолированные атомы  $^{138}\text{Cs}$  и  $^{88}\text{Rb}$  [71]. Схема образования молекулярных кластеров изотопов  $^{138}\text{Cs}$  и  $^{88}\text{Rb}$  и их взаимодействия с аэрозольными частицами представлена на рис. 1.4.

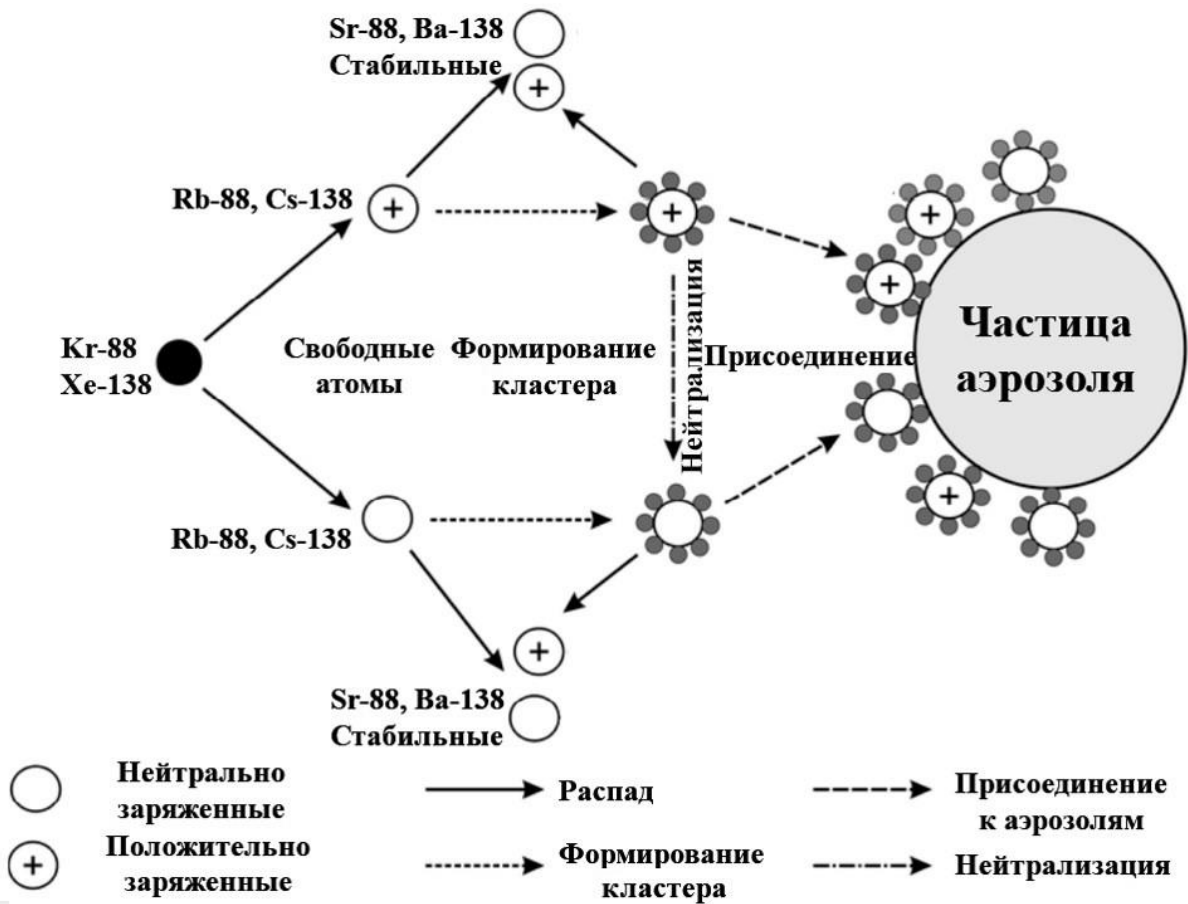


Рис. 1.4. Схема образования молекулярных кластеров изотопов  $^{138}\text{Cs}$  и  $^{88}\text{Rb}$  и их взаимодействия с аэрозольными частицами

## 1.6. Распределение радиоактивного аэрозоля по размерам

Распределение аэрозоля по размерам может быть представлено функцией логнормального распределения [3]

$$df = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln(GSD)} \exp\left[-\frac{(\ln d - \ln GM)^2}{2[\ln(GSD)]^2}\right] d \ln d, \quad (1.6)$$

где  $GM$  – средний геометрический диаметр (СГ);  $GSD$  – стандартное геометрическое отклонение (СГО);  $d$  – диаметр частицы.

Логнормальная функция, которая описывает распределение аэрозоля, может быть дана в терминах активности, численной концентрации, поверхностного распределения или объемного распределения. Информация о распределении поверхности важна, когда преобладают процессы осаждения

небольших радиоактивных аэрозолей на большие аэрозоли. Распределение аэрозолей по массе представляет интерес, когда радиоактивные аэрозоли образуются в результате рассеивания твердых радиоактивных материалов или образования микрокапель радиоактивных растворов. Распределения размеров поверхности  $S(r)$  и объема  $V(r)$  по радиусу частицы  $r$  представлены как [72]

$$S(r) = 4\pi r^2 \left[ \frac{dN(r)}{d \ln(r)} \right], \quad (1.7)$$

$$V(r) = \frac{4}{3} \pi r^3 \left[ \frac{dN(r)}{d \ln(r)} \right]. \quad (1.8)$$

На здоровье человека может влиять воздействие не только крупнодисперсных, но и мелких и ультрадисперсных аэрозолей [23, 25, 26], в особенности радиоактивных. Поэтому для оценки дозы облучения радоном и продуктами его распада необходимо знать количество и место отложения вдыхаемых продуктов распада радона в легких. Для расчета дозы основными параметрами являются объемная активность продуктов распада, неприсоединенная фракция и распределение активности аэрозолей по размерам.

## **1.7. Фильтрация аэрозолей**

Метод фильтрации является наиболее широко используемым для отбора проб радиоактивных аэрозолей [8–10]. Кроме того, для защиты здоровья человека существует множество устройств, в которых используется фильтрация аэрозолей [3, 73].

Рассмотрим механизмы, приводящие к улавливанию аэрозольных частиц на фильтрующем материале.

### ***1.7.1. Механизмы осаждения аэрозольных частиц на фильтр***

Фильтры удаляют частицы, когда те сталкиваются и прикрепляются к поверхности волокон. Воздушные фильтры улавливают частицы различными

способами. Когда расстояние между волокнами меньше, чем частица, частица не может пройти (так называемый ситовый эффект). Однако в большинстве случаев частицы меньше, чем расстояние между волокнами, и этот метод не эффективен. Общая эффективность фильтрации может быть рассчитана из эффективности отдельного волокна, которая является эффективностью каждого волокна. Эффективность отдельного волокна можно оценить как сумму эффективности отдельного волокна для каждого из различных механизмов осаждения.

Ниже приводится краткое описание пяти механизмов улавливания частиц на волокнах аэрозольных фильтров. Все они, кроме электростатического притяжения, являются механическими процессами [74].

Инерционное осаждение – это самый важный механизм фильтрации для крупных частиц. Крупные частицы высокой плотности обладают большой инерцией, что делает их малочувствительными к изменениям направления воздушного потока. Поскольку линии тока изменяются вблизи волокон фильтра, эти частицы ударяются о волокно и остаются там. Эффективность отдельного волокна, связанная с этим механизмом, увеличивается с инерцией частиц, скорости фильтрации воздуха и с более резкой кривизной линий тока. Инерционный эффект ( $a_{ин}$ ) пропорционален квадрату радиуса ( $r$ ) частицы и скорости фильтрации ( $v$ );

$$a_{ин} \sim r^2 v \quad (1.9)$$

Зацепление (касание) важно как для крупных частиц, так и для частиц максимально проникающего размера. Этот механизм имеет место, когда частица, которая следует за потоком воздуха, соприкасается с волокном и попадает в ловушку. Это происходит, когда расстояние между волокном и линией тока находится в пределах радиуса частицы. Этот механизм усиливается, когда волокно и частица имеют сопоставимые размеры, и является единственным механизмом, который не зависит от скорости фильтрации. Для заданного размера частиц не все линии тока будут

заканчиваться сбором частиц. Эффект касания ( $a_{\text{кас}}$ ) в первую очередь зависит от размера частиц

$$a_{\text{кас}} \sim r. \quad (1.10)$$

Диффузионное осаждение обусловлено тем, что очень мелкие частицы сталкиваются с волокном фильтрующего материала и остаются прикрепленными силой Ван-дер-Ваальса. Благодаря броуновскому движению эти мелкие частицы могут столкнуться с волокном, даже когда их линия тока не пересекается с волокном. Диффузия частиц увеличивается с уменьшением размера частиц и имеет особое значение для диаметров частиц ниже 0,1 мкм. Диффузионный эффект ( $a_{\text{дифф}}$ ) обратно пропорционален скорости фильтрации и размеру частиц:

$$a_{\text{дифф}} \sim \left(\frac{1}{rv}\right)^{1/2}. \quad (1.11)$$

Гравитационное оседание (седиментация). Этот механизм имеет меньшую эффективность, чем другие, за исключением случаев, когда размер частиц велик, а скорость движения воздуха мала. Зависимость гравитационного оседания от размера частиц и скорости фильтрации можно выразить так:

$$a_{\text{сед}} \sim \frac{r}{v}. \quad (1.12)$$

Электростатическое притяжение. Для количественной оценки электростатического осаждения необходимо знать заряд на частицах и волокнах, потому что эффективность увеличивается с зарядом. Эффективность также увеличивается с уменьшением скорости фильтрации воздуха. Когда в частицах или волокнах нет значительного заряда, этим механизмом пренебрегают, но, когда появляются эти заряды, механизм очень важен. Когда волокно заряжено, оно индуцирует электрическое поле, создавая силу в направлении волокна и заставляя частицу следовать этому направлению, и кулоновское притяжение увеличивает эффективность пробоотбора. Заряженные волокна оказывают положительное влияние на эффективность фильтрации без увеличения перепада давления. С другой стороны, этот заряд может быть потерян при работе с ионизирующим



излучением, аэрозолями органических жидкостей, работе в условиях высокой влажности или температуры, а также при накоплении пыли. Электростатический эффект ( $a_{\text{эл}}$ ) зависит от величины электростатического заряда волокон, размера частиц и скорости фильтрации. Эта зависимость может быть представлена в виде:

$$a_{\text{эл}} \sim \frac{r^2}{v}. \quad (1.13)$$

Процессы улавливания аэрозольных частиц на фильтре представлены на рис. 1.5.

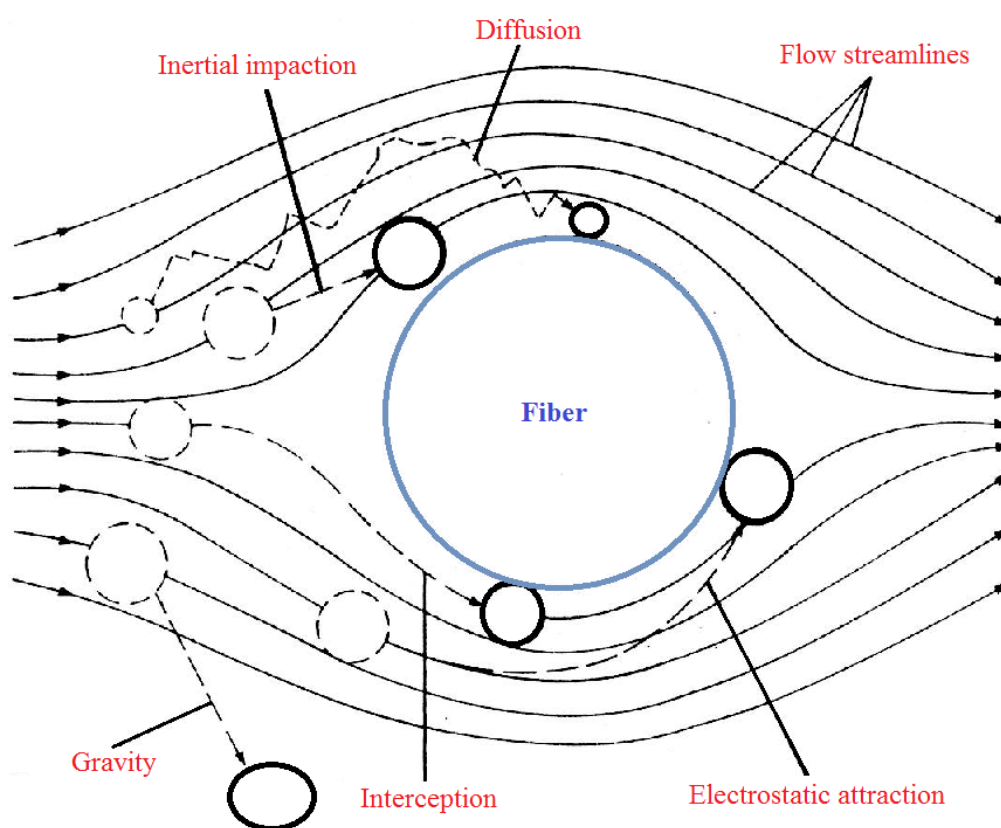


Рис. 1.5. Механизмы улавливания частиц аэрозольными фильтрами

Первоначальный процесс фильтрации в большинстве исследований был рассмотрен для случаев, когда на поверхности фильтра собираются небольшие количества аэрозольных частиц. При этом важно не только понять исходные параметры, которые влияют на фильтрацию, но также знать, какие изменения могут произойти с ними в процессе отбора пробы [75].

### 1.7.2. Эффективность аэрозольных фильтров

Производительность фильтра часто выражается в процентах эффективности. Теория аэрозольной фильтрации с помощью волокнистых фильтров в настоящее время достаточно полно описана, и, зная параметры фильтрующего слоя и условия фильтрации, можно рассчитать эффективность фильтра и сопротивление волокнистого слоя для частиц любого размера [76]. Для волокнистого фильтра эффективность варьируется для разных размеров частиц и скоростей потока. Бессмысленно указывать эффективность волокнистого фильтра, не указывая размер частиц и скорость потока [77].

Методы фильтрации и используемое оборудование варьируются от устройств с малой скоростью отбора проб ( $1 \text{ л}\cdot\text{мин}^{-1}$  и менее) для регистрации аэрозолей в зоне дыхания отдельных работников до высокоскоростных пробоотборников (до  $60 \text{ м}^3\cdot\text{ч}^{-1}$  и более) для долгосрочного отбора проб на рабочем месте или в окружающей среде. Для отбора частиц в воздухе доступны разнообразные фильтрующие материалы [3, 4, 78–81]. Некоторые из наиболее часто используемых фильтров: фильтры Millipore, волоконные фильтры и фильтры Петрянова (ФП).

В табл. 1.1 приведены характеристики различных типов фильтров для отбора проб радиоактивных аэрозольных частиц в воздухе [10]. Фильтры Millipore, используемые для мониторинга радиоактивных частиц в воздухе, обеспечивают высокую эффективность сбора.

Таблица 1.1

Характеристики фильтров, используемых для отбора проб радиоактивных аэрозолей [10]

Тип фильтра	Состав фильтра	Типичная скорость пробоотбора (л·мин <sup>-1</sup> × см <sup>-2</sup> ·пси <sup>-1</sup> ) <sup>a</sup>	Эффективн. фильтра (%) <sup>б</sup>
Millipore type SMWP (размер пор 5,0 мкм) Millipore Corp, Bedford, MA	Смешанные эфиры ацетата целлюлозы и нитрата целлюлозы (хрупкие; электростатические; обе стороны одинаковые)	3,2	98,1 → >99,99
Millipore type AW19 (размер пор 5,0 мкм) Millipore Corp	Гомогенные, микропористые полимеры сложных эфиров целлюлозы, образованные вокруг целлюлозного полотна (шероховатые и одинаковые с обеих сторон)	3,2	99,93 → 99,99
Millipore type AABP (размер пор 0,8 мкм) Millipore Corp	Смешанные эфиры целлюлозы (хрупкие; электростатические; и сторона отбора темнее)	1,4	99,999 – >99,999
Whatman EPM 2000 Whatman LabSales, Hillsboro, OR	Микрофибра из боросиликатного стекла без связующего вещества (ломается при обработке и одинаковая с обеих сторон)	4	Нет данных
Whatman-41 Whatman LabSales	Бумажная фильтровальная бумага из целлюлозы (прочная; используется для фильтрации жидкости; обе стороны одинаковые)	5	43 → 99,5

<sup>a</sup> Скорость потока определяется при перепаде давления 5 пси (фунтов на кв. дюйм) или 35 кПа при атмосферном давлении 620 мм рт. Ст.

<sup>б</sup> Диапазон значений эффективности фильтра, как правило, соответствует диапазону диаметра частиц 0,035–1 мкм, перепаду давления 1–30 см рт. ст. (0,13–4 кПа) и диапазону линейной скорости потока 1–100 см·с<sup>-1</sup>.

Волокнистые фильтры – это фильтры для частиц, образованные матом из тонких волокон, которые в основном перпендикулярны направлению воздушного потока. Уровень пористости в фильтрах такого типа высок. Волокнистая фильтрация представляет собой сложный процесс из-за влияния интерференции соседних волокон и отклонения от идеальной структуры потока из-за случайной ориентации и неоднородности волокон. Способность этих фильтров собирать частицы зависит от размера частиц, их формы, заряда и других факторов. Наиболее распространенными материалами волокнистых фильтров являются волокна из целлюлозы, стекловолокна и пластика. Известны три различных типа волокнистых фильтров: фильтры из незаряженного стекловолокна и два вида фильтров из пластикового волокна, которые представляют собой заряженные синтетические фильтры и нановолоконный фильтр. Фильтры из стекловолокна не имеют электростатического заряда. Конструкции держателей стекловолоконных фильтров достаточно сложные. Они представляют собой комбинации различных фильтрующих слоев, которые влияют на производительность фильтрации.

Заряженные синтетические фильтры изготавливаются из электростатически заряженных волокон. Они создают электростатические поля, которые увеличивают сбор электрически заряженных частиц. Действие электростатических сил может быть намного больше, чем гравитационных или инерционных эффектов.

Для фильтров Петрянова (ФП), представляющих основной интерес, толщина слоя фильтрующего материала может варьироваться от долей миллиметра до нескольких миллиметров. Когда такие фильтрующие слои спрессованы, их толщина уменьшается до долей миллиметра, однако сопротивление потоку газа при этом резко возрастает. Поверхностная плотность фильтра лежит в интервале от 10 до 50 г/м<sup>2</sup>. Отсутствие посторонних включений или обрывков волокон, которые могут загрязнить дисперсионную среду, считается важным качеством материалов ФП. Высокая

эффективность ФП объясняется толщиной волокон. Известно, что чем тоньше волокно, тем выше эффективность удаления частиц [1, 76, 81]. Обычно толщина стандартных волокон, используемых для изготовления ФП, варьируется от 0,6 до 7 мкм. Наиболее широко используются волокна диаметром 1,5 мкм.

Фильтры Петрянова обладают многими полезными характеристиками: высокой эффективностью, низким весом, малым аэродинамическим сопротивлением и высокой эластичностью. Материалы ФП используются для защиты органов дыхания человека [82– 84]. Сопротивление к потоку воздуха материалов ФП, изготовленных из тонкого волокна, пропорционально скорости фильтрации, и из теории и опыта известно, что при использовании нескольких слоев материала ФП их общее сопротивление будет равно сумме сопротивлений исходного слоя. Эффективность фильтра для удаления аэрозоля обычно принимается как сумма различных механизмов захвата частиц одним волокном с последующим использованием этого параметра для определения общей эффективности фильтра [1]. Широко используемые аналитические аэрозольные фильтры (АФА) были разработаны на основе материалов ФП [81, 85]. Они изготавливаются с рабочей поверхностью 3, 10 или 20 см<sup>2</sup>. Они могут быть использованы в радиометрическом, радиоспектрометрическом, радиографическом, химическом, бактериальном и дисперсном анализах [6]. Табл. 1.2 иллюстрирует характеристику аналитических фильтров ФП (АФА-РСП-20, АФА-РМП-20 и АФА-РМВ-20).

Характеристики аналитических фильтров АФА-РСП, АФА-РМП и АФА-РМВ [81, 86]

Тип фильтра	РСП	РМП	РМВ
Внешний вид	Композитный волокнистый полимерный материал, содержащий слои нановолокон.	Композитный волокнистый полимерный материал, содержащий слои нановолокон.	Однородный композитный волокнистый материал без сквозных отверстий
Площадь фильтра:	3, 10, 20 см <sup>2</sup>	3,10, 20 см <sup>2</sup>	3,10, 20 см <sup>2</sup>
Стандартное гидродинамическое сопротивление (при скорости потока 1 см/с)	16±3 Па	15±3 Па	16±3 Па
Коэффициент проскока аэрозольных частиц диаметром 0,34 мкм (для РМВ диаметром 0,05 мкм)	20 см/с, ≤5 % 80 см/с, ≤3 % 170 см/с, ≤2 %	1 см/с, ≤1 % 10–40 см/с, ≤15 %	1 см/с, ≤0.005 % 16 см/с, ≤0.05 %
Масса единицы площади фильтра	3,5 ± 0,5 мг/см <sup>2</sup>	3,0 ± 0,5 мг/см <sup>2</sup>	30 ± 0.5 мг/см <sup>2</sup>
Типичная скорость потока (л·мин <sup>-1</sup> ·см <sup>-2</sup> ·пси <sup>-1</sup> ) <sup>a</sup>	20	60	–
Допустимая воздушная нагрузка на фильтр, л/мин	100	100	–

<sup>a</sup> Скорость потока определяется при перепаде давления 5 пси (фунтов на кв. дюйм) или 35 кПа при атмосферном давлении 620 мм рт. ст.

Радиометрические фильтры АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 изготовлены из перхлорвинила, композитного волокнистого полимерного материала, содержащего слои нановолокон. Радиометрические фильтры АФА-РСП-20 используются для альфа-излучающих аэрозолей. Передний слой такого фильтра состоит из волокон диаметром 0,3–0,5 мкм [11, 81]. Для фильтров

АФА-РМП-20 на обратной стороне имеется тканая хлопковая марлевая опора фильтрующей ткани. Марля имеет около 38 нитей на 5 см (номинально 20 нитей на дюйм) в одном направлении и около 59 нитей на 5 см (номинально 30 нитей на дюйм) в другом направлении [86]. Эти фильтры предназначены для радиометрического анализа аэрозолей [11]. Фильтры АФА-РМВ-20 состоят из однородного композитного волокнистого материала без сквозных отверстий.

Аналитические фильтры АФА-РМП были разработаны в период бурного развития атомной промышленности в СССР (1952–1962 гг.). Эти типы фильтров обладают хорошей способностью улавливать  $\alpha$ -активные аэрозоли, однако необходимо учитывать поправку на самопоглощение частиц в волокнистом фильтре. На рис. 1.6 показана принципиальная схема фильтра АФА-РМП-20.

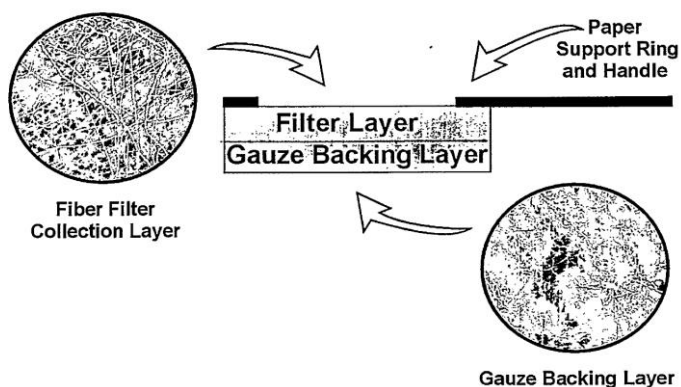


Рис. 1.6. Принципиальная схема узла фильтра АФА-РМП-20 (не в масштабе), показывающая взаимное расположение бумажного опорного кольца и ручки, собирающий слой волоконного фильтра и защитный слой марли [86]

В настоящей работе были использованы аэрозольные фильтры Петрянова различных лет выпуска. Фильтры АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 нового типа были изготовлены не более чем за 6 месяцев до тестирования, а старого – почти десять лет назад. Фильтр типа АФА-РМП-20 имеет такую особенность, как электростатическое осаждение аэрозолей на волокнах

фильтра. Длительное хранение может привести к уменьшению электростатического заряда и, как следствие, снижению фильтрующей способности фильтра. Для АФА-РСП-20 электростатическое осаждение не столь существенно, как для фильтра типа АФА-РМП-20. На рисунке 1.7 представлен внешний вид передней и задней сторон АФА-РСП-20, АФА-РМП-20 (новые и старые) и фильтров АФА-РМВ-20.



Рис. 1.7. Внешний вид передней и задней сторон фильтров АФА-РСП-20, АФА-РМП-20 (новые и старые) и фильтров АФА-РМВ-20

Для фильтров при регистрации альфа-активных аэрозольных частиц существует ряд требований, которым они должны отвечать:

1. фильтры, предназначенные для радиометрического анализа, должны обеспечивать высокоэффективное улавливание аэрозолей при эквивалентной толщине фильтрующего слоя, выраженного через пробег альфа-частиц в воздухе, не более 3,0 см;
2. сопротивление аналитических фильтров должно обеспечивать эффективный отбор проб аэрозолей, необходимый для экспрессного радиационного мониторинга загрязнения воздуха в рабочих помещениях и технологических выбросов;
3. аналитические фильтры должны иметь высокую механическую прочность, чтобы обеспечивать высокоскоростной отбор проб;



4. аналитические фильтры должны обладать необходимой термической и радиационной стойкостью для мониторинга загрязнения воздуха при промышленных выбросах;
5. аналитические фильтры должны обладать высокой устойчивостью к химически агрессивным средам;
6. для удобства измерения рабочая зона аналитических фильтров не должна превышать размеры стандартных датчиков, с помощью которых производятся радиометрические измерения.

Эффективность отбора и падение давления при использовании фильтров существенно зависят от типа фильтра, размера пор, пористости, размера частиц и скорости воздушного потока [87–92]. Кроме того, некоторые исследователи сообщали об изменении эффективности отбора при разных характеристиках нагрузки и изменении характеристик проницаемости частиц во времени [93].

### ***1.7.3. Проблемы при использовании аэрозольных фильтров***

Характеристики аэрозольных фильтров изменяются в зависимости от количества аэрозольных частиц, осевших на фильтре. Здесь рассмотрены различные проблемы, возникающие при использовании воздушных фильтров. Основные проблемы жизненного цикла аэрозольных фильтров рассмотрены ниже.

***Увеличение падения давления.*** Падение давления на фильтре увеличивается со временем, потому что сопротивление потоку воздуха растет с увеличением количества частиц, захваченных в фильтре. При увеличении сопротивления потоку воздуха требуется больше энергии для поддержания того же расхода воздуха. Однако, если производительность прокачивающего устройства не контролируется, то скорость воздушного потока будет уменьшаться по мере увеличения падения давления.

***Побочные продукты от использованных фильтров.*** В типичных фильтрах, используемых для фильтрации и очистки воздуха, загрязняющие

частицы задерживаются и остаются там до тех пор, пока фильтр не будет очищен или заменен. Воздушные фильтры вентиляции часто заменяются после 0,5–1 года эксплуатации. Важно отметить, что под воздействием влаги некоторые микроорганизмы могут размножаться из осажденного органического материала, что приводит к появлению неприятного запаха. Этот неприятный запах может раздражать людей, занимающих внутренние помещения, и являться источником «синдрома больного здания» (Sick building syndrome) – состояния, затрагивающего офисных работников. Обычно оно сопровождается головными болями и проблемами с дыханием, обусловленными нездоровыми факторами в рабочей среде, такими как плохая вентиляция. При использовании долго эксплуатируемых фильтров также существует риск выброса загрязняющих веществ из воздуха, скопившихся на фильтре.

#### ***Снижение эффективности заряженных синтетических фильтров.***

Стекловолоконные фильтры и заряженные синтетические фильтры меняют свою эффективность, по мере накопления пыли на фильтре [81]. В фильтрах из стекловолокна диаметр волокон важен для эффективности фильтрации. Как правило, в используемых фильтрах эффективность увеличивается из-за частиц, накопленных в фильтре. В фильтрах такого типа обычно начальная эффективность – это минимальная эффективность, которая увеличивается со временем. Большинство доступных данных показывает, что эффективность использованных фильтров выше, чем новых.

С другой стороны, эффективность заряженных синтетических фильтров со временем может снижаться. Заряд на волокнах экранируется скопившимися частицами пыли, вследствие чего эффективность фильтрации использованных фильтров значительно ниже, чем чистых фильтров.

***Обход воздушного потока (байпас).*** Держатель фильтра удерживает фильтр внутри вентиляционного канала. Обход фильтра (байпас) – это количество воздуха, которое не проходит через фильтр из-за наличия зазоров

в держателе. Это зависит от размера и геометрии зазоров вокруг фильтра, а также от падения давления и эффективности фильтра.

Поток воздуха через систему будет разделен на два потока: один проходит через фильтрующую среду, а другой – в обход фильтра. В зависимости от размера зазора влияние на производительность фильтров различно. Чем больше зазор и, следовательно, чем выше обходной поток, тем больше он влияет на производительность фильтра и тем больше погрешность при расчете эффективности. Даже умеренные неплотности могут существенно повлиять на эффективность фильтрации [95]. Эффект байпаса увеличивается при более высоких перепадах давления. Обычно более эффективными являются фильтры с более высоким перепадом давления, и, следовательно, они также наиболее чувствительны к байпасу воздуха. Это означает, что не всегда более эффективный фильтр имеет лучшую производительность; если эффективный фильтр имеет высокий байпас воздуха, его производительность может быть снижена до характеристики фильтра более низкого класса. Наименьшее падение давления достигается в новых фильтрах до накопления пыли; байпасный поток увеличивается в течение срока службы фильтра. Ранее упоминалось, что эффективность стекловолоконных фильтров обычно увеличивается с накоплением пыли. Тем не менее, если учитывать воздушный байпас, этот вывод может измениться.

### **1.8. Определение размерного распределения радиоактивных аэрозолей**

Размерное распределение радиоактивных аэрозолей является одной из важных характеристик, определяющих численные значения дозовых коэффициентов при ингаляционном поступлении радионуклидов в организм человека. Для определения размерного распределения радиоактивных аэрозолей используются различные методы.

*Каскадные импакторы* разной конструкции применяются для оценки размерного распределения радиоактивных аэрозолей и их аэродинамических

диаметров. Метод основан на эффекте инерционного осаждения аэрозолей на различных каскадах импактора. Эффективность инерционного осаждения пропорциональна скорости движения частиц и квадрату их диаметра. Недостаток – зависимость коэффициента осаждения от влажности и температуры воздушной среды. При отборе аэрозольной пробы при помощи импакторов происходит ее разложение на отдельные фракции в зависимости от размера частиц. Далее путем автордиографии или измерения скорости счета отдельных осадительных мишеней находят распределение числа радиоактивных частиц и их активности по отдельным фракциям. Это дает возможность проводить анализ дисперсного состава непосредственно в воздушном потоке, без предварительного осаждения частиц из газообразной среды.

Типичный импактор представляет собой прибор, в корпусе которого последовательно расположены сопла с установленными напротив них плоскими поверхностями – коллекторными пластинами [2, 4, 95, 96]. Частицы, обладающие инерцией, сепарируются за счет соударения (импакции) с поверхностью коллекторной пластины. Диаметр сопел уменьшается по ходу потока аэрозоля, а линейная скорость струи увеличивается, в результате чего на каждой следующей ступени улавливаются все более мелкие частицы.

На рис. 1.8 представлена схема импактора, состоящего из семи каскадов, выполненных из нержавеющей стали. При его эксплуатации после последнего каскада устанавливается фильтр, на котором осаждаются частицы, прошедшие через все ступени импактора, а за импактором подключается устройство для измерения скорости расхода воздуха.

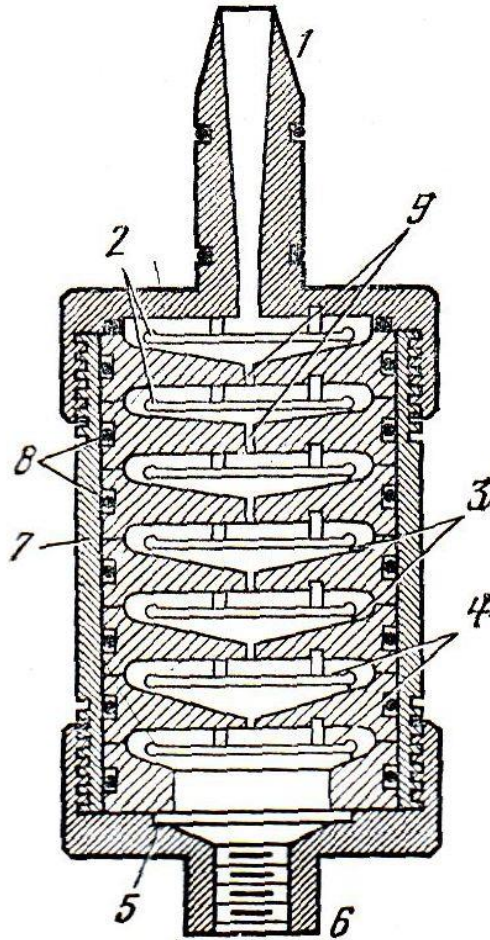


Рис. 1.8. Схема каскадного импактора [95]. 1 – навинчивающаяся крышка с входным соплом; 2 – проволочные держатели коллекторных пластинок; 3 – опорные ножки держателей; 4 – коллекторные пластинки (круглые покровные стекла для микроскопии диаметром 22 мм); 5 – мембранный фильтр (8-я ступень импактора); 6 – нижняя навинчивающаяся крышка, присоединяемая к вакуумной линии; 7 – корпус импактора; 8 – уплотнительные кольца отдельных блоков; 9 – сопла уменьшающегося диаметра, мм: 0,081; 0,066; 0,053; 0,043; 0,033; 0,025; 0,015

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

$$Stk = \frac{u \cdot \tau}{w}, \quad (1.14)$$

где  $W$  – радиус сопла отдельного каскада;  $u$  – линейная скорость потока воздуха;  $\tau$  – коэффициент, характеризующий релаксацию аэрозольной частицы и зависящий от диаметра и плотности аэрозольной частицы, а также от плотности и вязкости среды.

Каждый каскад импактора характеризуется величиной  $d_{50\%}$  – диаметром частиц, оседающих на коллекторные пластины при определенной скорости с вероятностью 50 %. Для импакторов с круглым соплом данная величина рассчитывается:

$$d_{50\%} = \sqrt{Stk} \cdot \sqrt{\frac{9\pi\mu a^3}{4C_c\rho_p Q}}, \quad (1.15)$$

где  $Stk$  – число Стокса;  $\mu$  – вязкость среды;  $a$  – диаметр сопла;  $Q$  – объемный расход воздуха;  $\rho_p$  – плотность среды;  $C_c$  – поправка Каннингема (коэффициент сопротивления Милликена).

**Диффузионная батарея.** Диффузионная батарея – это простое механическое устройство, в котором технические параметры самого прибора и условия эксперимента могут варьироваться с целью изменения исследуемого диапазона размеров частиц. Такое варьирование позволяет либо охватить большую область, либо улучшить разрешение в некоторой частной области размеров. Диапазон их применения покрывает до четырех порядков величины размеров – от десятых долей нанометров до сотен нанометров. В основе принципа лежат диффузионные свойства частиц, которые посредством броуновского движения сталкиваются с окружающими молекулами газа и связываются с любой поверхностью, претерпевающей столкновение [97].

Диффузионные батареи представляют собой некоторый набор отбирающих элементов, которые могут быть расположены последовательно или параллельно. Частицы в соответствии с их диффузионными свойствами разделяются на каскадах (если батарея имеет последовательное расположение элементов) или каналах (при параллельном расположении) батареи, формируя некий неотрицательный сигнал, связанный с числом частиц на каждом

элементе. Вид сигнала зависит от исследуемой характеристики частиц (геометрического размера, массы, объема, активности). Оценивается степень прохождения частиц с помощью такого параметра, как проницаемость – отношение числа частиц на входе к числу частиц, преодолевших отбирающий элемент. С помощью этих измерений восстанавливается искомое размерное распределение аэрозольных частиц. Самые известные и широко используемые виды диффузионных батарей можно характеризовать видом отбирающих элементов – параллельные пластины, цилиндрические трубки, проволочные экраны.

Дифференциальные конструкции предполагают оценку оседания 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 искомого распределения значительно повышается. Другим преимуществом метода является использование единственного канала и единственного пробоотборного устройства [98–101].

Диффузионные батареи такого типа называются Graded Screen Array (GSA) [97]. Данный термин описывает систему, состоящую из улавливающих элементов в виде проволочных сеток с фиксированными геометрическими параметрами, расположенных последовательно или параллельно. Основная цель такой системы – это измерения активности оседающих на сетчатых экранах аэрозольных частиц. Пример представлен на рис. 1.9.

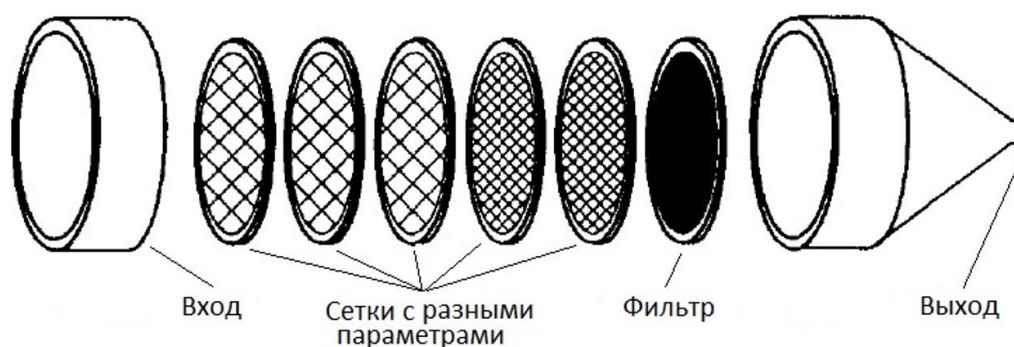


Рис. 1.9. Диффузионная батарея GSA каскадного типа с дифференциальной конструкцией

Эффективность сбора частиц на отдельном экране ( $\varepsilon$ ) выражается через сумму эффективностей разных процессов удаления частиц из потока: диффузии ( $\varepsilon_D$ ), интерцепции ( $\varepsilon_{IN}$ ), соударения ( $\varepsilon_{IM}$ ) и учета взаимного действия диффузии и интерцепции ( $\varepsilon_{ID}$ ). Эффективности измеряются в относительных единицах. Согласно теории фильтрации [103] аддитивная эффективность улавливания одной сеткой аэрозольной частицы определенного диаметра:

$$\varepsilon(d) = \varepsilon_D(d) + \varepsilon_{IN}(d) + \varepsilon_{IM}(d) + \varepsilon_{ID}(d), \quad (1.16)$$

где  $\varepsilon_D(d)$  – эффективность улавливания за счет механизмов диффузии;  $\varepsilon_{IN}(d)$  – эффективность улавливания за счет механизмов зацепления;  $\varepsilon_{IM}(d)$  – эффективность улавливания за счет механизмов инерции;  $\varepsilon_{ID}(d)$  – эффективность улавливания за счет сочетанного действия механизмов диффузии и зацепления;  $d$  – диаметр частицы.

Расчет отдельных составляющих эффективности проводится по формулам:

$$\varepsilon_D(d) = 2,7 \cdot Pe^{-2/3}, \quad (1.17)$$

$$\varepsilon_{IN}(d) = (2 \cdot \kappa)^{-1} \cdot f(R), \quad (1.18)$$

$$\varepsilon_{IM}(d) = (2 \cdot \kappa)^{-2} \cdot I \cdot Stk, \quad (1.19)$$

$$\varepsilon_{ID}(d) = 1,24 \cdot (\kappa \cdot Pe)^{-1/2} \cdot R^{2/3}, \quad (1.20)$$



где  $Pe = \frac{d_f \cdot v_0}{D}$  – число Пекле;  $k = -0,5 \cdot \ln\left(\frac{2\alpha}{d}\right) + \frac{2\alpha}{d} - 0,75 - \left(\frac{\alpha}{\pi}\right)^2$  – гидродинамический фактор;  $R = \frac{d}{d_f}$  – параметр захвата;

$I = (29,6 - 28 \cdot \alpha^{0,62}) \cdot R^2 - 2,75 \cdot R^{2,8}$  – индекс, характеризующий улавливающую способность сетчатого экрана;  $Stk = \frac{\rho_p \cdot d^2 \cdot v_0 \cdot C}{9 \cdot \mu \cdot d_f}$  – число Стокса;

$d_f$  – диаметр проволоки, м;  $D$  – коэффициент диффузии, см<sup>2</sup>/с;  $v_0$  – линейная скорость потока воздуха, м/с;  $C$  – поправка Каннингема, учитывающая переход от вязкого течения к молекулярному;  $\mu$  – динамическая вязкость воздуха,  $1,83 \cdot 10^{-2}$  г/(м·с);  $\alpha$  – доля твердого объема;  $\rho_p$  – плотность частиц, г/см<sup>3</sup>.

Самое главное ограничение применения диффузионных батарей – сложность интерпретации данных. Из описания действия прибора понятно, что размерное распределение полидисперсных аэрозольных частиц не может быть измерено напрямую и, следовательно, должно быть получено из ограниченного набора измерений.

Кроме рассмотренных выше методов, возможно оценить размерное распределение аэрозолей путем их избирательного осаждения в пакете фильтров [81, 104, 105]. Для практической реализации такого метода, который называется *методом многослойных фильтров (ММФ)*, наряду с прочим, требуются фильтрующие материалы с определенными свойствами. В частности, проведение дисперсного анализа возможно при наличии тонких, высокопористых, однородных, прочных, пластичных фильтрующих материалов с заданной структурой. Волокнистые фильтрующие и сорбционно-фильтрующие материалы Петрянова, разработанные для аналитических целей, существенно расширили область использования фильтров ФП. Важно подчеркнуть, что получение необходимых характеристик аэрозолей возможно после послойного анализа осадка на фильтрующих слоях пакета, полученного в процессе единственного пробоотбора с помощью стандартных средств.

Композиция фильтров для проведения анализа размерного распределения аэрозолей обычно состоит из трех фильтров. Информация о размере частиц получается при априорном задании функции распределения. Предполагается (с высокой степенью обоснованности), что спектр размеров подчинен логарифмически нормальному распределению и при решении обратной задачи находятся параметры этого распределения – медианный диаметр и стандартное геометрическое отклонение.

В стандартных подходах используются фильтры с различными значениями аэродинамического сопротивления. Так, например, в работе [105] использован пакет фильтров АФА-ЗДА-0,15, АФА-ЗДА-0,25, АФА-РМА-20, которые располагали по ходу воздушного потока в порядке возрастания стандартного аэродинамического сопротивления 15, 25 и 200 Па соответственно. Аэродинамическое сопротивление первых двух фильтров, скорость потока и доля задержанного вещества служат исходными данными для нахождения параметров логарифмически нормального распределения. Эти аналитические фильтры выполнены из материала ФПА-70, третий – из ФПА-15-2,0. Исследования показали, что метод многослойных фильтров позволяет с достаточно высокой точностью (более 95 %) определять дисперсный состав аэрозолей с разными физико-химическими характеристиками. Типовые материалы для пакетов многослойных фильтров представлены в табл. 1.3.

Таблица 1.3

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			

Несомненными достоинствами метода являются: простота использования, низкое аэродинамическое сопротивление пакета фильтров, возможность эффективно осаждавать частицы тонкодисперсного диапазона (менее 1 мкм) [81].

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

### **1.9. Постановка задач исследования**

Представленный выше анализ продемонстрировал, что в настоящее время имеется достаточно хорошее понимание физики аэрозолей, их характеристик и процессов их взаимодействия со взвешенными частицами, газовой фазой, поверхностями и т. д. Созданы различные фильтрующие материалы, позволяющие эффективно улавливать аэрозольные частицы, находящиеся в воздухе. Разработаны средства измерения размерного распределения радиоактивных аэрозолей во всем диапазоне респираторной фракции от 0,5–1 нм до 20–30 мкм. Вместе с тем имеется ряд задач, требующих более глубокой научной проработки.

#### **1. Детальное изучение свойств бытовых источников аэрозолей:**

- измерения размерного распределения аэрозольных частиц от различных источников;
- Изучение динамики изменения концентрации частиц и их характеристик во время работы источника аэрозолей и после прекращения его работы и т.д.;
- описание взаимодействия аэрозолей от искусственных источников с продуктами распада радона для оценки распределения активности ДПР радона по размерам;

- определение доминирующих размеров частиц от искусственных источников, вносящих максимальный вклад в радиационную и токсическую нагрузку на человека.
- 2. Изучение проницаемости аэрозольных фильтров для радиоактивных аэрозолей различной дисперсности.
- 3. Разработка универсального устройства, позволяющего определить размерное распределение радиоактивных аэрозолей без предварительной информации об их источниках и характеристиках (задача «черного ящика»).

## ГЛАВА 2. МЕТОДЫ И СРЕДСТВА ПРОВЕДЕНИЯ ИЗМЕРЕНИЙ

### 2.1. Диффузионная батарея

В данной работе для получения распределения по размерам радиоактивных аэрозольных частиц в диапазоне 1–100 нм была использована одноканальная диффузионная батарея экранного типа с последовательным расположением улавливающих элементов и дифференциальным подходом к получению данных, разработанная в радиационной лаборатории Института промышленной экологии УрО РАН [106, 107]. Схематично прибор представлен на рис. 2.1.

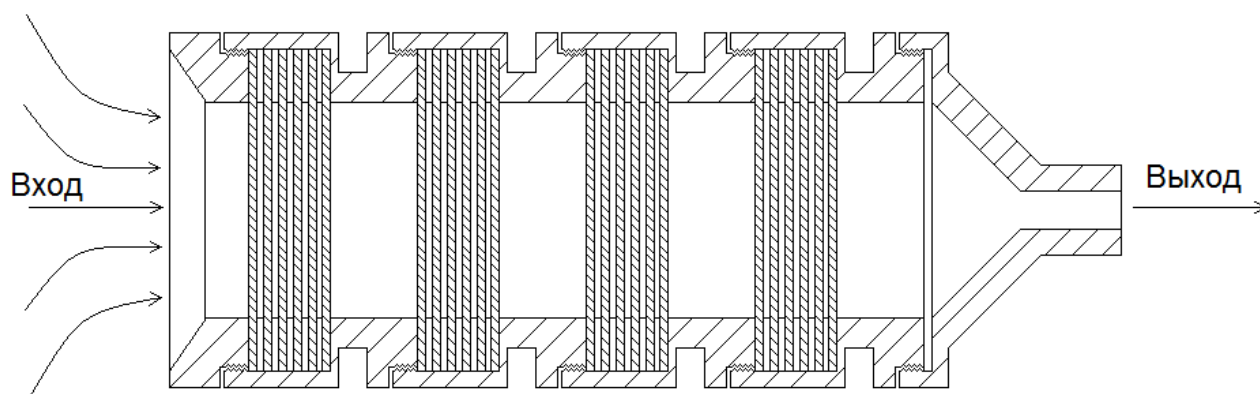


Рис.2.1. Схема диффузионной батареи

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 и обеспечения ламинарности потока воздуха. Принцип действия батареи основан на осаждении радиоактивных аэрозолей на улавливающих элементах при помощи броуновского движения. Использовался набор от 10 до 20 сетчатых экранов, позволяющий определять размер аэрозольных частиц с активностным медианным термодинамическим диаметром в диапазоне 0,1 – 100 нм.

Диаметр рабочей поверхности сетчатых экранов составлял 5 см. После экранов устанавливался финишный фильтр для улавливания частиц, прошедших ступени диффузионной батареи. Внешний вид используемых сеток в увеличенном масштабе представлен на рис. 2.2, а их параметры – в табл. 2.1.

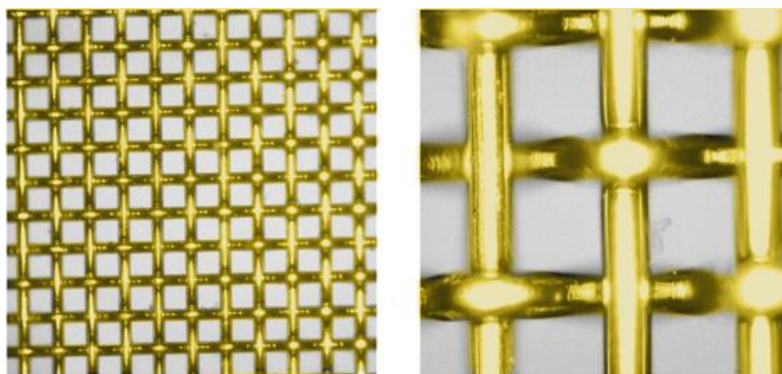


Рис. 2.2. Вид под микроскопом сетчатого экрана из латуни с толщиной проволоки 65 мкм и шириной раскрытия ячейки 100 мкм

Таблица 2.1

Параметры используемых сетчатых экранов

Тип сетки	Материал сетки	Плотность материала, г/см <sup>3</sup>	Толщина проволоки, мкм	Ширина раскрытия ячейки, мкм	Толщина сетки, мкм	Перепад давления при потоке 1 см/с, мПа
(65/100/8,5)	Латунь (Cu-Zn)	8,5	65	100	130	31,4
(30/40/7,8)	Сталь (Fe-Ni-Cr)	7,8	30	40	60	76,0

Для анализа значений объемной активности на улавливающих элементах диффузионной батареи рассчитывалась эффективность осаждения аэрозольных частиц, исходя из параметров сеток, представленных в табл. 2.1. Расчет осаждения аэрозольных частиц на элементы диффузионной батареи производился по уравнениям (1.16)–(1.20).

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

$$CP(d, k) = \prod_{q=0}^k P(d, q), \quad (2.1)$$

где  $P$  – проницаемость одной сетки для аэрозольной частицы определенного диаметра;  $CP$  – кумулятивная проницаемость всего набора улавливающих элементов;  $k$  – номер каскада;  $q$  – номер улавливающего элемента в диффузионной батарее;  $d$  – диаметра аэрозольной частицы.

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

$$IR(d, k) = CR(d, k) \cdot \prod_{q=0}^{k-1} (1 - CR(d, q)), \quad (2.2)$$

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.

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 итерационного и математического методов, представленных в работах [107, 108], и программного пакета, разработанного М. Рогозиной в Институте промышленной экологии УрО РАН.

## 2.2. Каскадные импакторы

Распределение активности по каскадам импакторов позволяет оценить размер частиц дисперсной фазы аэрозоля в виде логарифмически нормального распределения с двумя основными параметрами: АМАД и СГО. Зная эти параметры, можно оценить распределение осаждающихся аэрозольных частиц по отделам респираторного тракта человека (и, соответственно, провести оценку распределения дозы внутреннего облучения по органам и тканям). Однако если распределение активности по размерам частиц дисперсной фазы аэрозоля не является логарифмически нормальным или может быть представлено несколькими модами, то оценка значений АМАД и СГО будет выполнена с большими погрешностями.

При наличии достаточно большого количества каскадов с функцией пропускания, близкой к ступенчатой, имеется возможность регистрировать и анализировать мультимодальное распределение активности.

Каскадные импакторы эффективны для исследований в размерном диапазоне от 1 до 10 мкм, но некоторые конструктивные доработки позволяют снизить минимальный размер до 0,3 мкм.

В данной работе использовались два различных каскадных импактора:

- импактор АИП-2, разработанный ООО «НПП «Доза», г. Зеленоград;
- импактор, разработанный в Грифитском университете г. Брисбена, Австралия (аналог каскадного импактора Марк-3).

Каскадные импакторы, применяемые в данной работе представлены на рис. 2.3. Импактор АИП-2 аттестован во ФГУП ВНИИФТРИ и внесен в Государственный реестр средств измерений. Основные параметры импактора Марк-3 представлены производителем.

В табл. 2.2 представлены параметры каскадных импакторов, используемых в данной работе при фиксированном расходе воздуха 30 л/мин.





Рис. 2.3. Каскадные импакторные устройства

Таблица 2.2

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

№ каскада	АИП-2	Марк-3
1	23,3	26,4
2	8,3	12,2
3	5,0	4,64
4	1,6	2,38
5	0,8	1,36
6	–	0,77
7	–	0,42

Определение параметров распределения аэрозольных частиц по активности может быть выполнено двумя способами. При первом способе расчета определение параметров (АМАД и СГО) логнормального

распределения (ЛНР) проводят в соответствии с инструкцией по эксплуатации каскадного импактора АИП-2 [112]. Определение параметров ЛНР проводят по гистограмме распределения.

На основании данных измерения активности радионуклида на пластинах (подложках) и фильтре каскадного импактора находят значения интегральной функции распределения  $f(d_{50i})$  по формуле:

$$f(d_{50i}) = \left\{ (A_6 + A_5 + A_4 + \dots + A_i) / \sum_{i=1}^6 A_i \right\} \cdot 100 \% \quad (2.3)$$

и заносят их в табл. 2.3. Значения функции  $f(d_{50i})$  наносят на вероятностно-логарифмические координаты. Если рассматриваемое распределение является логнормальным, то через полученные точки можно провести прямую линию. В этом случае значение диаметра ( $d_{50}$ ), при котором  $f(d_{50}) = 50 \%$ , равно АМАД, а отношение диаметров  $d_{84}/d_{50}$  ( $f(d_{84}) = 84 \%$ ) будет равно СГО (рис. 2.4).

Таблица 2.3

Расчет интегральной функции распределения каскадного импактора

i	№ ступени импактора					
	1	2	3	4	5	6
$A_i$ , Бк	$A_1$	$A_2$	$A_3$	$A_4$	$A_5$	$A_6$
$d_{50i}$ , мкм	$\infty$	23,3	8,3	5,0	1,6	0,8
$f(d_{50i})$ , %	$(A_6 + \dots + A_1) / \sum A_i$	$(A_6 + \dots + A_2) / \sum A_i$	$(A_6 + \dots + A_3) / \sum A_i$	$(A_6 + \dots + A_4) / \sum A_i$	$(A_6 + \dots + A_5) / \sum A_i$	$A_6 / \sum A_i$

Аэродинамический диаметр, мкм

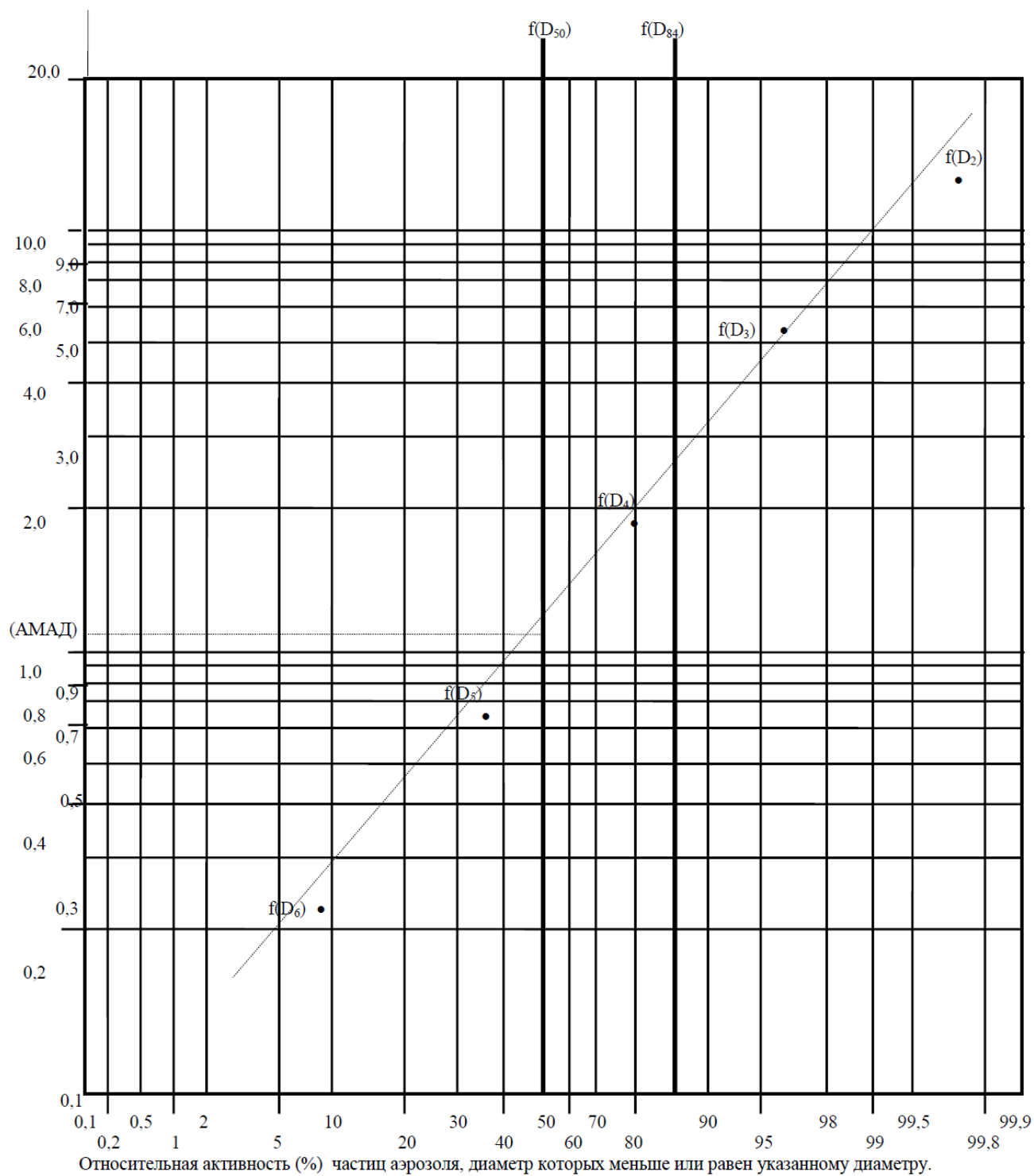


Рис. 2.4. Логарифмически нормальное распределение на вероятностной координатной сетке

При втором способе расчета АМАД и СГО результаты анализа активности выполняются методом, представленным в работе [3], основанном на том же предположении, что распределение аэрозольных частиц по размерам подчиняется логнормальному распределению. Расчет среднего значения АМАД выполнялся по формуле 2.4, а расчет значения СГО выполнялся по формуле 2.5:

$$\ln \text{АМАД} = \frac{\sum A_i \cdot \ln d_{50i}}{\sum A_i}, \quad (2.4)$$

$$\ln \text{СГО} = \left[ \frac{\sum A_i \cdot (\ln A_i - \ln \text{АМАД})^2}{\sum A_i} \right]^{0,5}, \quad (2.5)$$

где  $A_i$  – значение ЭРОА радона, измеренное на  $i$ -ом каскаде импактора;  $d_i$  – эффективный каскадный аэродинамический диаметр  $i$ -го каскада.

Стоит отметить, что, в отличие от диффузионной батареи, типовой импактор не позволяет надежно оценить распределение активности аэрозольных частиц по размерам с помощью нескольких мод. Все результаты активности, полученные с улавливающих элементов каскадного импактора, интерпретируются в предположении единого логнормального распределения. Соответственно, медиана такого распределения характеризует медианный аэродинамический диаметр аэрозольных частиц.

Немонотонное распределение активности по элементам каскадного импактора может свидетельствовать о наличии в атмосфере нескольких мод радиоактивных аэрозолей с существенно отличающимися размерами [113, 114]. Однако определение истинных параметров размерного распределения данных мод крайне затруднено.

### **2.3. Измерение размерного распределения нерадиоактивных аэрозолей**

Параметры проницаемости аэрозольных фильтров, диффузионной батареи и каскадного импактора существенно зависят от концентрации аэрозольных частиц в атмосфере экспериментальной камеры. В связи с этим в камере была предусмотрена возможность изменения концентрации аэрозольных частиц за счет распыления состава на основе глицерина.

Контроль концентрации аэрозольных частиц проводился при помощи диффузионного аэрозольного спектрометра (ДАС), модель 2702-М (рис. 2.5).

Технические характеристики прибора представлены в табл. 2.4.



Рис. 2.5. Диффузионный аэрозольный спектрометр (ДАС), модель 2702-М

Таблица 2.4

Технические характеристики диффузионного аэрозольного спектрометра (ДАС) модель 2702-М

Диапазон измеряемых размеров частиц	5–200 нм, 0,2–10 мкм
Предел измеряемых концентраций	$10^5$ частиц/см <sup>3</sup>
Диапазон измеряемых относительных влажностей	5–100 % (точность +/- 3 %)
Точность измерения температуры	+/- 0,4 °С
Точность измеряемых давлений	+/-1,5 %
Представление информации	графическое и табличное.
Операционная система РС	Windows XP
Время одного измерения	1 мин
Время непрерывного измерения	до 240 ч
Источник питания	переменный ток 240 В, 50 Гц постоянный ток 12 В

Автоматизированный диффузионный аэрозольный спектрометр, предназначен для измерения в аэрозольной фазе концентраций и спектра размеров частиц. Спектрометр работает в режиме мониторинга, охватывая диапазон размеров от 5 до 200 нм. Кроме полной концентрации и распределения по размерам частиц в этом диапазоне, измеряется температура воздуха, влажность и давление атмосферы. Все параметры аэрозольной системы и воздушной среды выводятся на монитор и меняются через каждые 1–2 мин. Управление измерительной системой может производиться как выносной клавиатурой, так и сенсорной панелью монитора. Встроенный компьютер управляет работой измерительной системы, обрабатывает и хранит измеренные данные как в обработанном, так и в изначальном виде.

Диффузионный аэрозольный спектрометр включает в себя блок диффузионных батарей и клапанов для осаждения мелкодисперсных частиц и разделения потоков, конденсационный укрупнитель частиц до оптически активного размера, лазерный аэрозольный спектрометр для определения концентрации частиц и спектра размеров субмикронных частиц (рис. 2.6), компьютер контролирующей работу прибора.

Для определения спектра размеров частиц измеряется проскок частиц через ступени диффузионной батареи и дальнейшая обработка полученных результатов. Анализируемый поток воздуха или другого газа, содержащего аэрозольные частицы, пропускается через диффузионные батареи, представляющие собой ряд сеточек, на которых осаждаются высокодисперсные частицы, содержащиеся в потоке. Скорость осаждения зависит от коэффициента диффузии частиц в газе, а диффузия однозначно связана с размером частиц. Таким образом, измерив проскок частиц (долю частиц, которые прошли через батареи без осаждения) через диффузионные батареи, а затем, рассчитав его и сравнив с рассчитанным, можно оценить размер этих частиц.

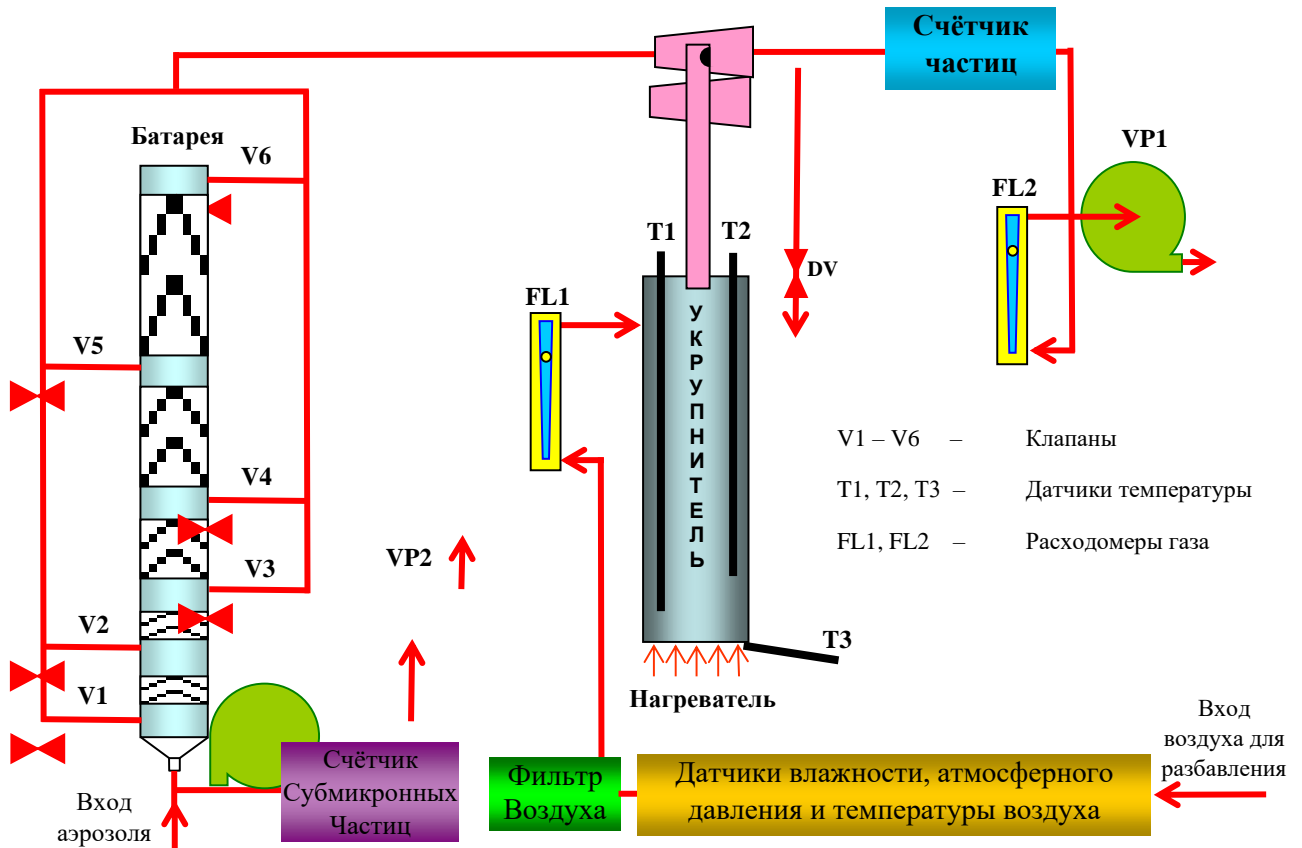


Рис. 2.6. Блок-схема диффузионного аэрозольного спектрометра, модель 2702-M

В диффузионных батареях происходит осаждение высокодисперсных аэрозолей. Эффективность осаждения определяется при помощи измерения проскока частиц через каждую батарею с известной геометрией. Малый размер измеряемых частиц исключает их прямой замер оптическим счётчиком, поэтому возникает необходимость использования дополнительного узла предварительного укрупнения аэрозолей, установленного перед входом в оптический счётчик частиц. После пропускания мелкодисперсного аэрозоля через зону насыщенных паров и конденсационного роста до оптически активного размера их концентрация определяется прямым замером при помощи оптического счетчика. В приборе установлен автоматический расходомер измеряемого аэрозольного потока, позволяющему отслеживать и контролировать величину измеряемого аэрозольного потока (прибор оптимизирован на расход 0,5 л/мин).

Технический результат достигается использованием стандартного гамма-распределения для описания распределения частиц по коэффициентам диффузии. Эта процедура позволяет получить нелинейное алгебраическое уравнение относительно параметров распределения для проскоков через диффузионные батареи с различным количеством сеток.

Дополнительно прибор оснащен встроенным модулем измерения субмикронных частиц в диапазоне от 0,2 до 10 микрон (показан на схеме). Диффузионный аэрозольный спектрометр может быть использован для мониторинга атмосферного аэрозоля при решении экологических проблем, для диагностики наночастиц в различного рода нанотехнологиях, а также для других научных и технологических целей.

#### **2.4. Радиометр БДПА-01**

В качестве средства для измерения активности аэрозольных фильтров по  $\alpha$ -излучению был использован блок детектирования БДПА-01 (рис. 2.7). Принцип действия блока детектирования, предназначенного для измерения малых уровней альфа-излучения, основан на использовании 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 в процессе работы. На торцевой поверхности корпуса расположен разъем для подключения кабеля. Чувствительная часть блока детектирования закрывается защитной крышкой. Диапазоны измерения и пределы допускаемой основной относительной погрешности представлены в табл. 2.5.





Рис. 2.7. Блок детектирования БДПА-01

Таблица 2.5

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

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

Блок детектирования БДПА-01 посредством USB-адаптера подключается к персональному компьютеру. Для работы с блоком детектирования используется программа, интерфейс которой представлен на рис. 2.8. Программа позволяет оценивать плотность потока, флюенс альфа-частиц и скорость счета со статистической погрешностью. При необходимости программа позволяет проводить непрерывные измерения с записью результатов с заданным интервалом в текстовый файл.

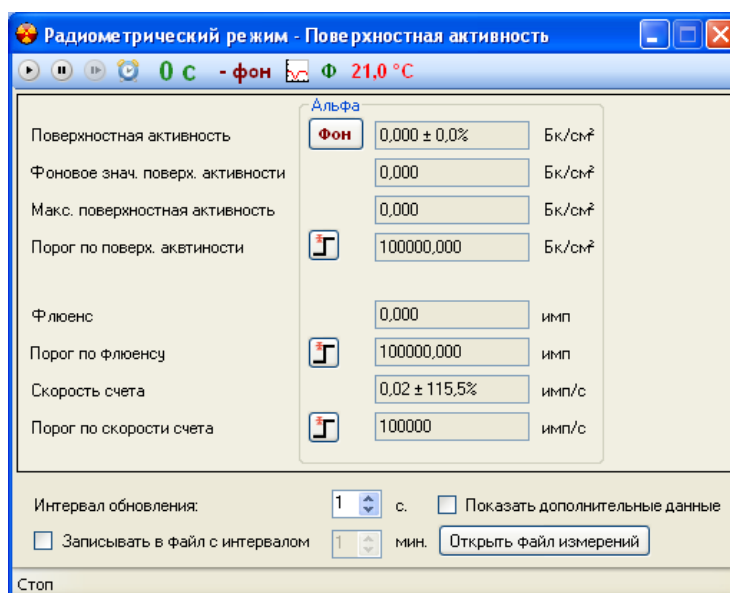


Рис. 2.8. Интерфейс программы для работы с блоком регистрации  $\alpha$ -излучения БДПА-01

## 2.5. Конструкция камеры для отбора проб аэрозолей ДПР радона

Конструкция камеры, в которой генерировались аэрозоли дочерних продуктов распада радона, в целом аналогична конструкции, используемой до недавнего времени в Государственном первичном специальном эталоне единицы объемной активности радиоактивных аэрозолей ГЭТ 39-2014. В период с 1998 по 2010 г. камера входила в состав рабочего эталона ДПР радона Региональной поверочной лаборатории радоновых приборов, действовавшей на базе Уральского государственного технического университета-УПИ. Камера представляет собой два соединенных вместе пластиковых бокса, каждый объемом по  $1 \text{ м}^3$  (рис. 2.9).

Боксы соединялись между собой при помощи открытого переходного соединения размерами  $60 \times 60$  см. Отбор проб радиоактивных аэрозолей проводился через специальный переходный шлюз, позволяющий устанавливать и убирать пробоотборник с аэрозольным фильтром, не вскрывая бокс.



Рис. 2.9. Конструкция камеры для отбора проб аэрозолей ДПР радона

Внутри бокса была помещены две шкалы от приборов, выпущенных в 1950-х гг. XX в. и содержащих светосостав постоянного действия на основе  $^{226}\text{Ra}$ . Данные шкалы являлась источником  $^{222}\text{Rn}$ . Уровни ЭРОА радона в камере составляли 2000 – 4000 Бк/м<sup>3</sup>.

Соотношение между активностью ДПР радона, связанной с аэрозольными частицами, и активностью, обусловленной так неприсоединенными продуктами распада с АМТД  $\sim 1$  нм, существенно зависит от концентрации аэрозольных частиц в атмосфере экспериментальной камеры. В связи с этим в камере была предусмотрена возможность изменения концентрации аэрозольных частиц за счет распыления состава на основе глицерина. Контроль концентрации аэрозольных частиц проводился при помощи диффузионного аэрозольного спектрометра (ДАС), модель 2702-М.

## ГЛАВА 3. СВОЙСТВА АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ ОТ РАЗЛИЧНЫХ БЫТОВЫХ ИСТОЧНИКОВ

### 3.1. Характеристики исследуемых источников аэрозолей

Эксперименты проводились по изучению свойств аэрозольных частиц от различных источников в помещении Радоновой лаборатории Уральского федерального университета, объем которого составляет 65 м<sup>3</sup>. Значения температуры во время проведения экспериментов были от 23 до 25 °С при относительной влажности 40–45 %. Концентрации и размеры частиц непрерывно контролировались с использованием диффузионного аэрозольного спектрометра ДАС до начала эксперимента, во время работы источника аэрозолей и после того, как генерирование аэрозолей прекращалось. Параметры аэрозоля, такие как концентрация, средняя площадь поверхности частиц и числовое распределение, а также метрологические параметры (температура, влажность и давление), записывались и автоматически сохранялись каждую минуту.

Различные источники аэрозоля были размещены в центре комнаты на расстоянии 3 м от ДАС. В течение большей части экспериментов источники были активны до тех пор, пока концентрация частиц в воздухе не стабилизировалась. Затем источник удалялся или деактивировался, и изучалось последующее снижение концентрации аэрозольных частиц.

В работе были исследованы следующие источники аэрозольных частиц:

- *Обычная табачная сигарета.* Эксперимент проводился в двух вариантах. В первом эксперименте сигарета самостоятельно тлела в течение приблизительно 10 мин. Во втором эксперименте доброволец выкуривал сигарету того же типа.
- *Электронная сигарета.* С привлечением того же добровольца концентрация аэрозолей создавалась в течение приблизительно 10 мин при помощи обычной электронной сигареты (рис. 3.1).



Рис. 3.1. Используемая электронная сигарета

- *Сигарета IQOS*. С привлечением другого добровольца концентрация аэрозолей создавалась при помощи сравнительно недавно появившегося устройства для курения, где происходит не тление табака, а только его нагрев.
- *Курение благовоний*. Зажигались три палочки популярных благовоний. Время горения составляло примерно 20 мин.
- *Термическая обработка пищи*. Электрическая плитка для приготовления пищи была включена на 30 мин: 15 мин для разогрева и 15 мин для приготовления рыбы на сковороде.
- *Парафиновые свечи*. Четыре свечи были зажжены в помещении до установления стабильной концентрации аэрозольных частиц. После горения свечей в течение 40 мин они были погашены влажной тканью.
- *Противомоскитная спираль*. Популярная и обычно используемая противомоскитная спираль тлела в течение приблизительно 60 мин (рис. 3.2).



Рис. 3.2. Противомоскитная спираль

### 3.2. Динамика изменения концентрации аэрозольных частиц от различных источников

Для анализа фонового распределения частиц аэрозоля был проведен ряд измерений в отсутствие искусственных источников аэрозолей. Среднее значение фоновой концентрации аэрозоля составляло  $10\,000 \pm 1\,800 \text{ см}^{-3}$ .

На рис. 3.3 представлена динамика изменения концентрации аэрозольных частиц, создаваемых шестью наиболее интенсивными источниками аэрозолей: термическая обработка рыбы, табачные и электронные сигареты, спирали для защиты от насекомых, свечи и благовония.

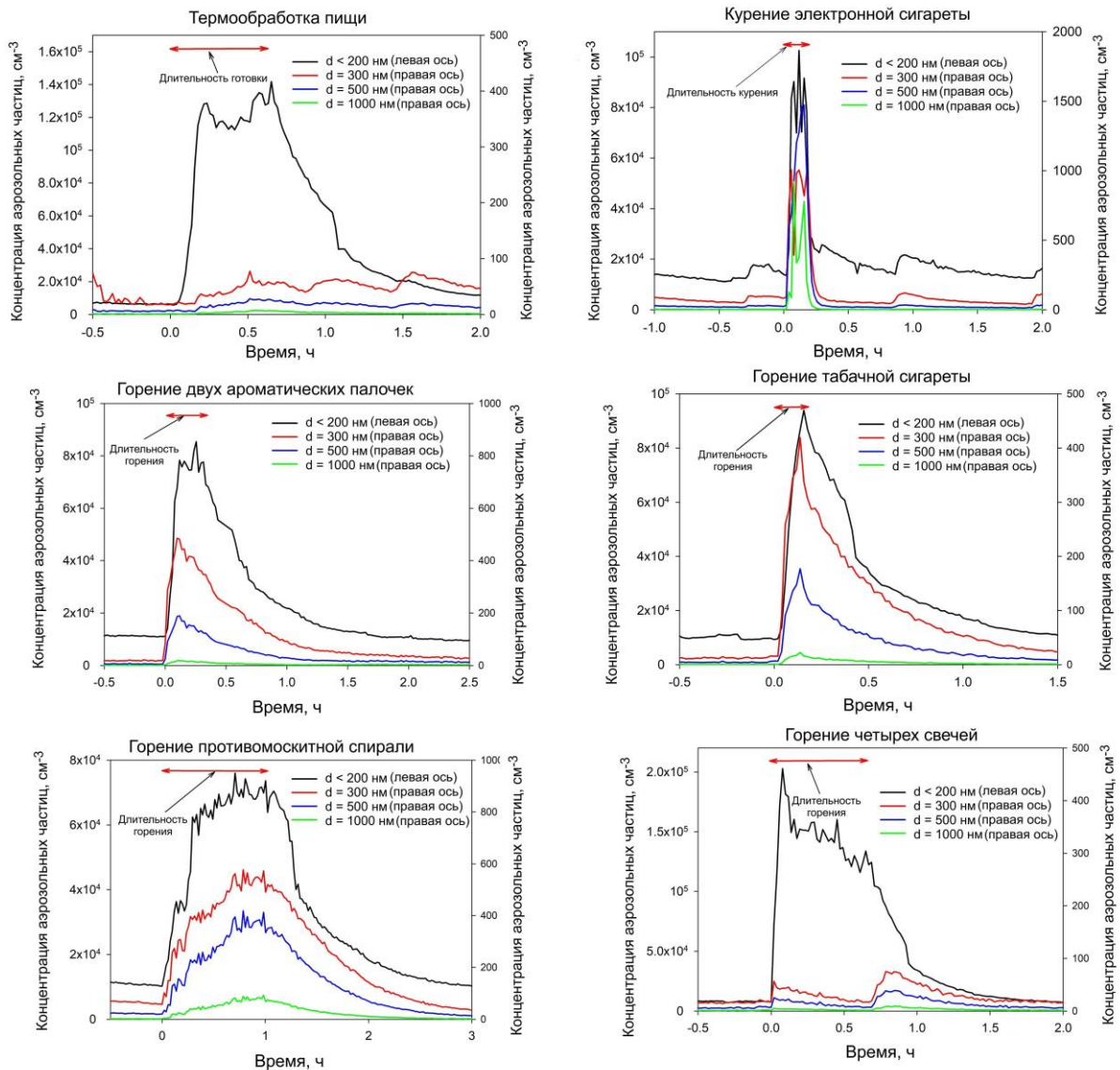


Рис. 3.3. Динамика изменения концентрации аэрозольных частиц, создаваемых наиболее интенсивными источниками аэрозолей

Максимальная концентрация ультрадисперсных частиц (УДЧ) с  $d < 200$  нм, приблизительно  $(1,2-1,5) \cdot 10^5$  см<sup>-3</sup>, наблюдалась для таких источников, как термическая обработка пищи и горение свечей. Минимальная концентрация в процессе действия источника аэрозолей наблюдалась для противомоскитной спирали  $\sim 7 \cdot 10^4$  см<sup>-3</sup>. Для частиц размером 300 нм численные значения концентрации находились в интервале от 50 до 800 см<sup>-3</sup>. Концентрации частиц диаметром 500 и 1000 нм для разных источников находились в диапазоне 20–1400 см<sup>-3</sup> и 5–700 см<sup>-3</sup> соответственно. Для мелкодисперсных (300–1000 нм) частиц было отмечено, что самая высокая концентрация имеет место для электронных сигарет и самая низкая концентрация – для горящих свечей.

В экспериментах с табаком, электронными сигаретами и ароматическими палочками концентрации фракции УДЧ и мелкодисперсной фракции достигали максимума в момент прекращения работы источника аэрозолей. Для противомоскитных спиралей это наблюдалось только для мелкодисперсных частиц.

При горении свечей наблюдалась обратная зависимость – увеличение концентрации мелкодисперсных аэрозолей при прекращении горения источника. Наиболее вероятно это может быть объяснено процессами коагуляции ультрадисперсных аэрозолей, находящихся в воздухе, однако детальное описание этого процесса может потребовать дальнейших исследований.

При приготовлении пищи не наблюдалось заметных изменений концентрации мелкодисперсных частиц, отмечалось только увеличение концентрации УДЧ с ее медленным уменьшением после прекращения готовки.

Представляет определенный интерес рассмотрение такого относительно нового источника бытовых аэрозолей, как курительное устройство IQOS, принцип действия которого основан на возгонке никотина из табака при его нагреве до температуры не более 350 °С. Особенностью данного устройства является отсутствие продуктов горения при его использовании. Динамика

изменения концентрации аэрозольных частиц при использовании IQOS представлена на рис. 3.4.

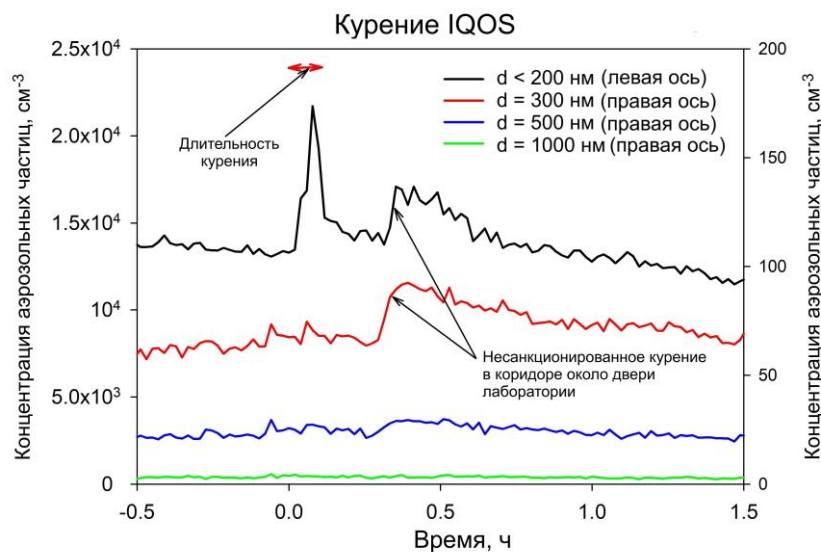


Рис. 3.4. Динамика изменения концентрации аэрозольных частиц при использовании IQOS

При использовании данного устройства отмечается только незначительное (не более чем в 1,5 раза по сравнению с исходным значением) увеличение концентрации ультрадисперсных частиц. Изменения концентраций аэрозолей в диапазоне 300–1000 нм не отмечается. Сопоставимым с влиянием использования IQOS на концентрацию аэрозольных частиц в воздухе оказалось несанкционированное курение в коридоре перед закрытой дверью лаборатории. В связи с малой значимостью данного источника аэрозолей в дальнейшем он был исключен из рассмотрения.

В табл. 3.1 описаны параметры численного распределения по размерам ультрадисперсных аэрозолей для различных источников аэрозолей. Для описания распределения использовались такие параметры, как счетный медианный диаметр (СМД) и стандартное геометрическое отклонение (СГО)

Для электронных сигарет, свечей и горения благовоний распределение частиц сместилось в область меньших размеров через 10 мин после



прекращения функционирования этих источников. Для табачных сигарет и термической обработке пищи наблюдался обратный эффект – смещение СМД частиц в сторону больших размеров. Для большинства источников размеры аэрозолей преимущественно относятся к моде нуклеации (диаметр частиц,  $d < 0,1$  мкм). Только при горении табачных сигарет и термической обработке пищи размер частиц переходит на начальный участок моды аккумуляции (диаметр частиц  $0,1 < d < 1$  мкм). Значения СГО для всех источников превышают 1,25 (табл. 3.1), что характеризует полидисперсное распределение частиц по размерам.

Таблица 3.1

Параметры численного распределения по размерам для различных источников аэрозолей.

Источник	Фон		Во время работы источника		10 мин после остановки источника		60 мин после остановки источника	
	СМД (нм)	СГО	СМД (нм)	СГО	СМД (нм)	СГО	СМД (нм)	СГО
Табачная сигарета	54,6	1,73	92,1	1,85	115,8	1,43	57,1	1,86
Электронная сигарета	54,5	1,84	71,3	2,22	39,4	2,06	50,1	1,83
Благовония	76,8	1,43	84,8	1,57	57,6	1,75	65,6	1,65
Термическая обработка пищи	49,3	2,19	78,4	1,64	94,4	1,52	84,1	1,50
Свечи	63,7	1,58	63,6	1,45	44,7	1,79	42,4	1,90
Москитная спираль	58,2	1,76	81,7	1,84	85,0	1,73	64,2	1,82

### 3.3. Динамика изменения распределения аэрозольных частиц от различных источников по массе

Численное распределение аэрозольных частиц по размерам не всегда позволяет оценить размер аэрозольной фракции, максимально воздействующей на человека при ингаляционном поступлении. Высокая концентрация частиц в ультрадисперсной области размеров во многих случаях может соответствовать относительно небольшой массовой доле распыленных

аэрозольных частиц [28]. Токсическое действие аэрозоля, попавшего в организм человека ингаляционным путем, будет пропорционально массе этого аэрозоля. В связи с этим для оценки размеров частиц, в которых содержится основная масса диспергированного вещества, необходимо перейти от распределения частиц по количеству к распределению по массе. Подобный расчет был выполнен в предположении, что аэрозольные частицы имеют сферические размеры и плотность, близкую к единице. Данное предположение является достаточно обоснованным, поскольку для всех рассмотренных источников аэрозолей (за исключением электронной сигареты) аэрозольные частицы представляют собой органические продукты горения или высокотемпературной возгонки с последующей конденсацией в воздухе [32–34]. Значения массовой концентрации аэрозолей от различных источников в зависимости от размера аэрозольных частиц и времени представлены в табл. 3.2.

Таблица 3.2

Массовая концентрация частиц ( $\text{мкг}/\text{м}^3$ ) для каждого источника в зависимости от размера аэрозольных частиц и времени после прекращения использования

Время	Термооб. пищи	Электр. сигарета	Табачная сигарета	Благовония	Москитная спираль	Свечи
$d \leq 200 \text{ нм}$						
До начала	1,77	2,10	2,10	4,10	3,00	2,11
Горение	56,3	35,5	43,4	38,4	40,1	32,6
+ 5 мин*	106	31,8	49,6	42,6	50,7	42,5
+ 10 мин	77,6	6,10	76,0	10,9	40,3	9,10
+ 15 мин	47,3	6,21	15,1	17,0	26,7	7,50
+ 20 мин	44,2	5,70	11,3	8,30	10,7	11,3
+ 30 мин	29,1	3,71	11,1	6,30	12,0	2,30
$d = 0,3 \text{ мкм}$						
До начала	0,43	0,43	0,17	0,27	0,53	0,24
Горение	0,56	10,4	3,82	5,73	6,47	0,42
+ 5 мин	0,80	10,3	4,13	4,21	7,24	0,80
+ 10 мин	0,69	2,12	3,19	3,02	6,22	0,98
+ 15 мин	0,63	0,92	2,52	2,46	5,16	0,77
+ 20 мин	0,84	0,72	2,06	1,58	4,25	0,62
+ 30 мин	0,86	0,55	1,32	0,99	2,80	0,40

Продолжение таблицы 3.2

Время	Термооб. пищи	Электр. сигарета	Табачная сигарета	Благовония	Москитная спираль	Свечи
d = 0,5 мкм						
До начала	0,41	0,72	0,27	0,39	0,71	0,41
Горение	1,07	52,0	7,00	9,75	16,1	0,89
+ 5 мин	1,58	53,4	7,57	6,73	19,4	1,94
+ 10 мин	1,38	4,63	5,57	4,55	15,8	2,32
+ 15 мин	1,16	1,26	4,16	3,65	12,4	1,83
+ 20 мин	1,32	0,92	3,39	2,32	9,74	1,43
+ 30 мин	1,26	0,72	2,17	1,44	6,13	0,90
d = 1 мкм						
До начала	0,40	0,77	0,46	0,41	0,56	0,58
Горение	1,87	142	6,53	7,73	20,7	1,40
+ 5 мин	3,19	150	6,84	5,37	26,7	3,38
+ 10 мин	2,58	7,09	4,77	3,78	20,7	4,23
+ 15 мин	1,93	1,13	3,94	2,83	15,4	3,19
+ 20 мин	1,88	0,79	3,00	1,96	11,7	2,52
+ 30 мин	1,55	0,58	1,98	1,33	7,10	1,61
d = 2 мкм						
До начала	3,01	7,10	3,00	3,60	4,04	6,68
Горение	17,3	1250	38,6	46,6	138	13,9
+ 5 мин	30,2	1290	40,8	32,0	175	31,2
+ 10 мин	24,9	52,7	29,6	25,2	138	39,2
+ 15 мин	19,9	8,62	23,0	19,3	99,3	30,8
+ 20 мин	18,2	5,50	18,3	13,7	77,3	23,7
+ 30 мин	14,2	4,52	12,5	10,3	47,5	15,3
d = 5 мкм						
До начала	8,08	28,2	17,3	12,0	7,72	31,6
Горение	43,0	611	32,0	36,9	92,7	45,5
+ 5 мин	82,9	631	35,6	24,6	116	75,9
+ 10 мин	60,9	65,6	19,8	36,4	98,3	88,4
+ 15 мин	49,0	20,1	21,0	25,7	69,7	79,8
+ 20 мин	37,7	12,3	18,5	22,2	62,5	59,9
+ 30 мин	32,3	9,94	10,1	25,4	54,6	47,4
d = 7 мкм						
До начала	13,8	48,5	12,9	20,4	13,2	54,0
Горение	64,1	440	34,9	38,8	95,0	68,8
+ 5 мин	83,6	490	34,5	36,6	114	121
+ 10 мин	81,0	68,9	37,9	37,9	81,8	112
+ 15 мин	62,0	37,9	22,4	35,3	88,7	111
+ 20 мин	53,4	23,0	25,8	30,2	80,1	94,0
+ 30 мин	38,8	13,6	15,5	20,8	82,7	59,4

Окончание таблицы 3.2

Время	Термооб. пищи	Электр. сигарета	Табачная сигарета	Благовония	Москитная спираль	Свечи
d = 10 мкм						
Горение	55,3	323	41,5	38,5	71,5	71,4
+ 5 мин	67,8	301,4	41,9	14,6	79,5	81,6
+ 10 мин	60,3	67,8	27,6	27,6	85,4	119
+ 15 мин	42,7	40,2	10,1	42,7	80,4	103
+ 20 мин	32,6	23,0	15,1	16,7	87,9	111
+ 30 мин	45,2	14,6	17,6	33,4	60,4	62,8
Суммарно 0,3–10 мкм						
До начала	39,7	141	71,8	55,6	40,9	153
Горение	183	2828	164	184	440	202
+ 5 мин	270	2926	171	124	538	316
+ 10 мин	232	269	128	138	446	366
+ 15 мин	177	110	87,1	132	371	330
+ 20 мин	146	66,2	86,2	88,7	333	293
+ 30 мин	134	44,5	61,2	93,7	261	188

\* Примечание: +t мин означает время после прекращения функционирования источника аэрозолей.

Из приведенных данных видно, что по массовой доле аэрозольные частицы практически от всех рассмотренных источников можно разделить на несколько выраженных групп.

- Ультрадисперсные аэрозоли диаметром менее 200 нм. Массовая концентрация этих аэрозолей, несмотря на их высокую количественную концентрацию  $\sim 10^5$ – $2 \cdot 10^5$  см<sup>3</sup>, относительно невелика и лежит в интервале от 32 для свечей до  $\sim 100$  мкг/м<sup>3</sup> при термической обработке пищи.
- Мелкодисперсные аэрозоли 0,3–0,5 мкм. Массовая концентрация аэрозолей этих размеров практически для всех источников существенно меньше, чем концентрация ультрадисперсных аэрозолей. Исключение составляет электронная сигарета, для которой массовые концентрации частиц размером 0,5 мкм в 1,5 раза превышают концентрации ультрадисперсных аэрозолей.

- Среднедисперсные аэрозоли 1–5 мкм. В данной области аэрозолей для большинства рассмотренных источников расположен максимум массовой концентрации аэрозольных частиц. Абсолютный максимум концентрации  $\sim 1\,200\text{--}1\,300$  мкг/м<sup>3</sup> отмечается для электронной сигареты при размере аэрозолей 2 мкм.
- Крупнодисперсные аэрозоли 7–10 мкм. Являются доминирующим размером в массовой концентрации аэрозолей для таких источников, как термическая обработка пищи и парафиновые свечи. При этом увеличение массовой концентрации крупнодисперсных аэрозолей наблюдается не в момент активной работы этих источников, а 10–20 мин спустя. По-видимому, данный эффект, наблюдаемый для этих же источников на количественном распределении аэрозольных частиц (рис. 3.3), обусловлен процессами взаимной коагуляции более мелких аэрозольных частиц после прекращения активной работы источника.

#### **3.4. Закономерности и динамика присоединения продуктов распада радона к аэрозольным частицам от различных источников**

Как было показано в главе 1, во всех помещениях всегда присутствует радиоактивный газ радон – в основном изотоп  $^{222}\text{Rn}$  [18]. При его распаде образуются радиоактивные дочерние продукты распада (ДПР):  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Po}$ . При распаде менее распространенного в помещениях  $^{220}\text{Rn}$  (торона) образуются короткоживущие радионуклиды  $^{216}\text{Po}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  и  $^{212}\text{Po}$  (рис. 3.5).

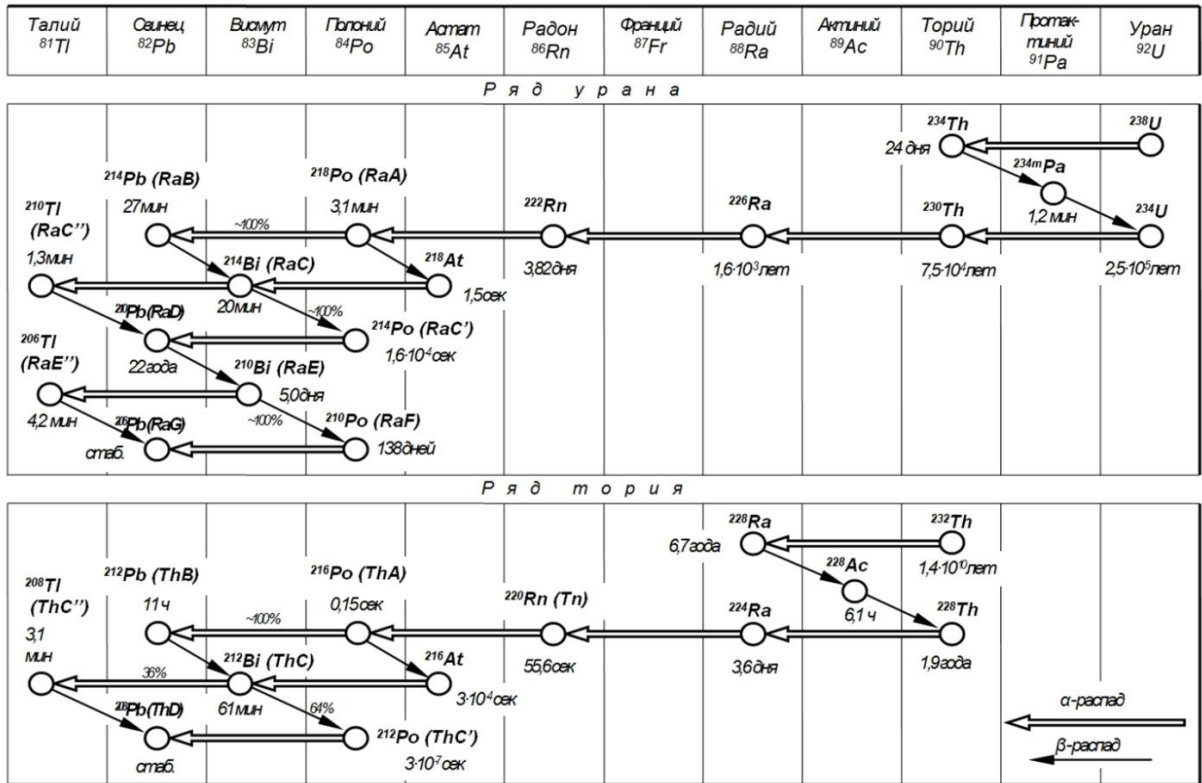


Рис. 3.5 Цепочки радиоактивного распада  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  (приведены не только стандартные, но и традиционно сложившиеся обозначения элементов цепочек распада  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$ )

В разделе 1.5 было показано, что образующиеся в виде изолированных атомов  $^{218}\text{Po}$  и  $^{212}\text{Pb}$  могут образовывать молекулярные кластеры с АМТД  $\sim 1$  нм (продукт распада торона  $^{216}\text{Po}$  исключается из рассмотрения ввиду его малого периода полураспада), называемые неприсоединенными продуктами распада. В течение относительно короткого времени неприсоединенные ДПР радона взаимодействуют с нерадиоактивными аэрозольными частицами, находящимися в воздухе, образуя радиоактивные аэрозоли более крупных размеров. В обычной невозмущенной атмосфере до 95 и более процентов ДПР радона оседают на поверхности амбиентных аэрозолей. Для ДПР торона эта величина составляет практически 100 %. Скорость присоединения молекулярных кластеров к аэрозольным частицам  $\bar{X}$  описывается уравнением [50]

$$\bar{X} = \int_0^{\infty} X(d)dd = \int_0^{\infty} \beta_A(d)Z(d)dd, \quad (3.1)$$

где  $\beta_A(d)$  – коэффициент присоединения к аэрозолям,  $Z(d)$  – распределение аэрозолей по размерам. Как было показано в главе 1, для наиболее распространенных частиц размером  $0,1 < d < 1,0$  мкм коэффициент присоединения может быть рассчитан как

$$\beta_A(d) = \frac{2\pi D_0 d}{\frac{8D_0}{dv_0} + \frac{d}{d+2l_0}}, \quad (3.2)$$

где  $D_0=6,8 \cdot 10^{-2}$  см<sup>2</sup>·с<sup>-1</sup> – коэффициент диффузии,  $v_0=1,72 \cdot 10^4$  см·с<sup>-1</sup> средняя тепловая скорость,  $l_0=4,9 \cdot 10^{-6}$  см – средняя длина свободного пробега для неприсоединенных продуктов распада. Для частиц малого диаметра ( $d < 0,1$  мкм) коэффициент присоединения рассчитывается как

$$\beta_A(d) = \frac{\pi d^2 v_0}{4}. \quad (3.3)$$

Для крупных аэрозольных частиц ( $d > 1$  мкм) процесс присоединения определяется исключительно диффузионными процессами [50]

$$\beta_A(d) = 2\pi D_0 d. \quad (3.4)$$

Величина  $\bar{X}$  позволяет оценить среднюю скорость взаимодействия неприсоединенной фракции ДПР радона с аэрозолями для расчета неприсоединенной фракции  $f_1$ , характеризующей относительное содержание в атмосфере радиоактивных аэрозолей с АМТД  $\sim 1$  нм. В анализируемой нами ситуации не меньший интерес представляет дифференциальное распределение скорости присоединения  $X(d)$ . В силу того, что период полураспада ДПР радона относительно мал, то для концентраций аэрозолей, типичных для обычных помещений и нормальных условий, можно пренебречь процессами взаимодействия аэрозольных частиц между собой и окружающей средой, приводящими к существенному изменению их размеров (коагуляция аэрозолей, увеличение их размеров за счет конденсации или, наоборот, уменьшения за счет испарения). В результате дифференциальное распределение скорости присоединения  $X(d)$  будет с достаточной точностью характеризовать распределение активности ДПР радона по размерам.

Экспериментальные данные по численному распределению аэрозольных частиц по размерам от различных источников  $Z(d)$  были подставлены в уравнения (3.2)–(3.4). Для ультрадисперсных частиц, для которых данные были представлены с шагом 5 нм, имелась возможность построения непрерывной функции распределения  $X(d)$  в диапазоне от 5 до 200 нм. Для частиц в диапазоне от 0,3 до 10 мкм, где непрерывное распределение построить нельзя, значения  $X(d)$  были представлены в виде фиксированных величин в виде значений для диаметров аэрозолей, соответствующих средним значениям в определенных интервалах, (рис. 3.6, 3.7). Соотношение между скоростями присоединения ДПР радона к ультрадисперсным аэрозольным частицам и частицам с диаметрами от 0,3 до 10 мкм приведено в табл. 3.3.



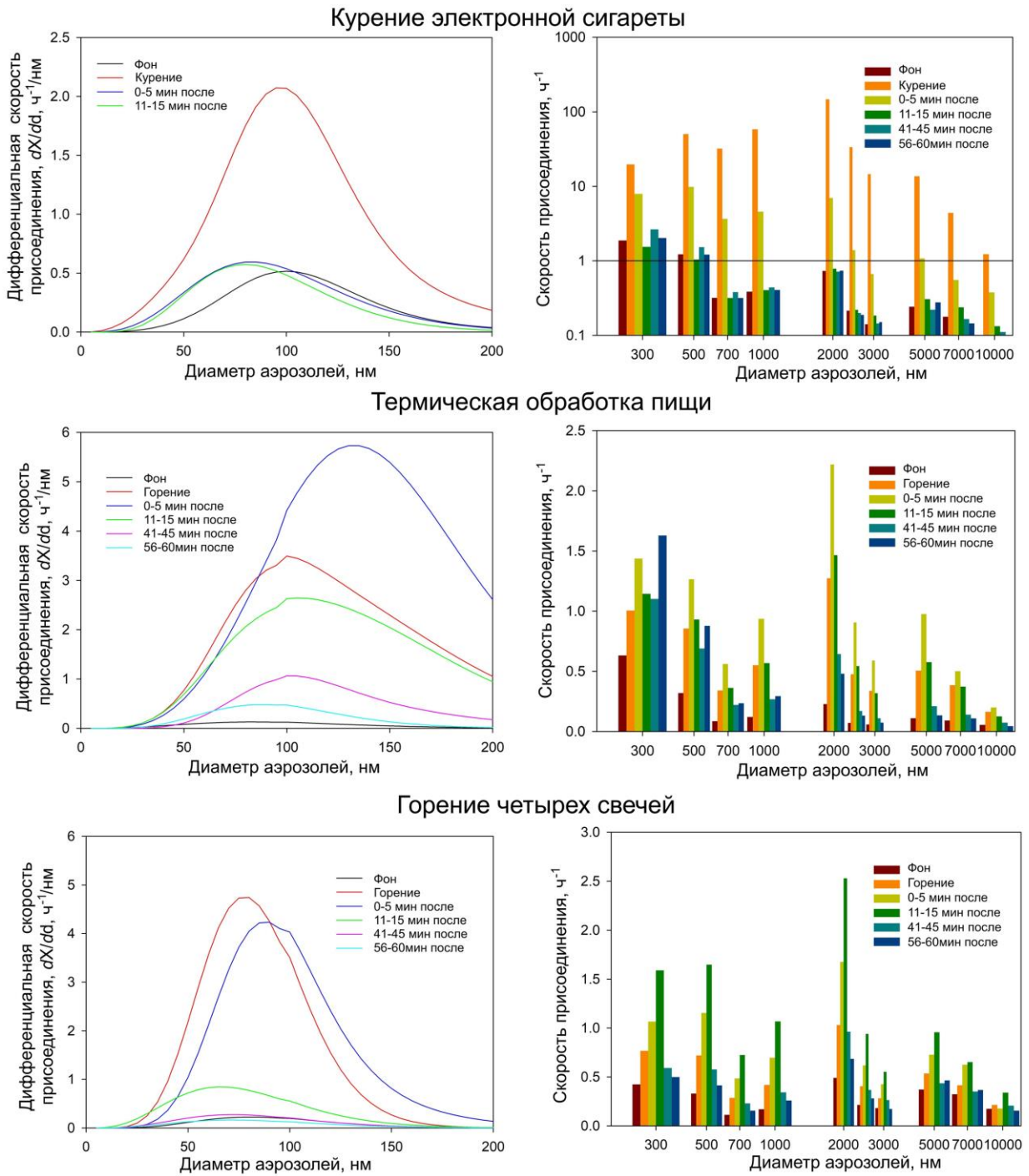


Рис. 3.6. Распределение скорости присоединения ДПР радона к аэрозолям по размерам аэрозольных частиц

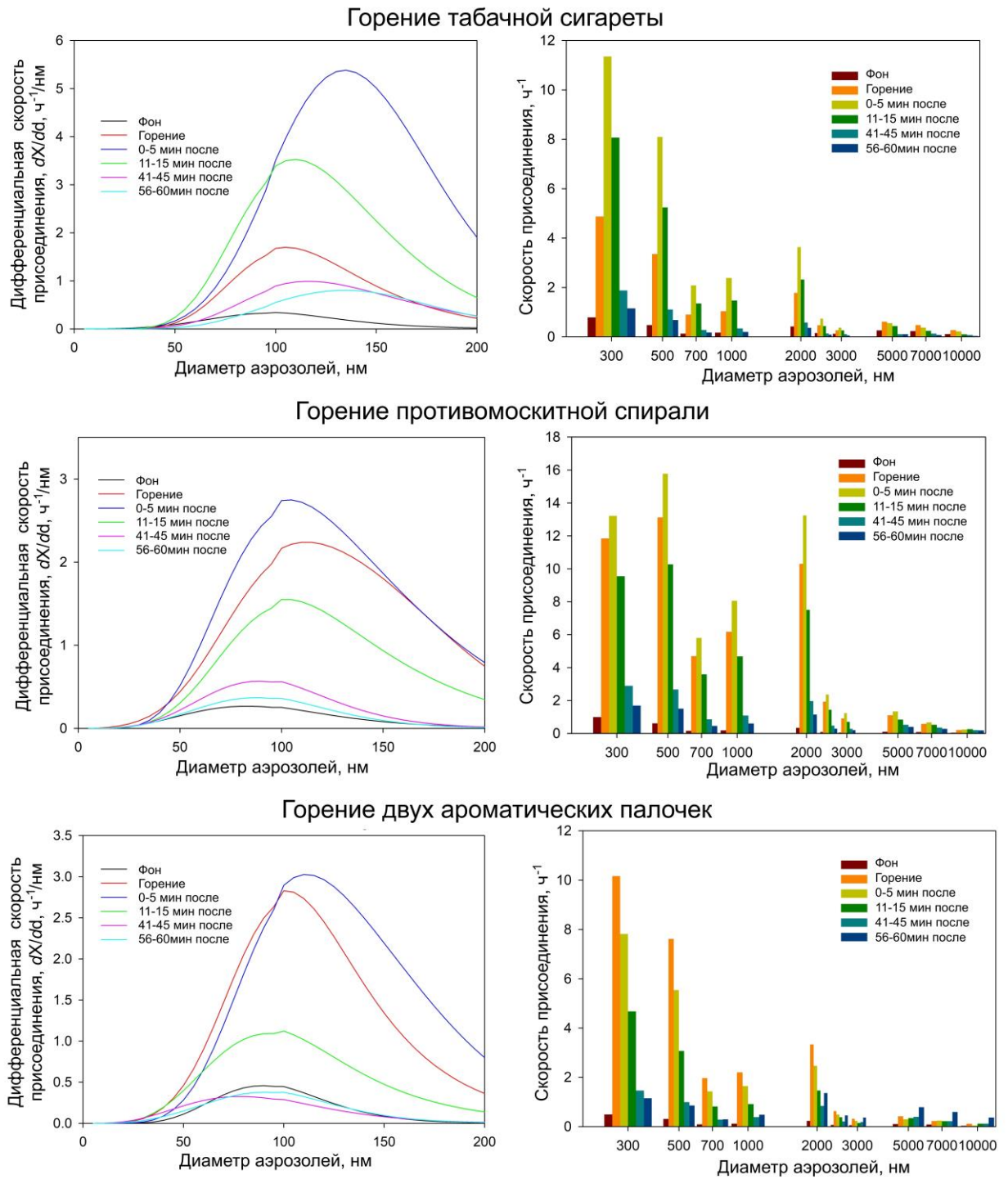


Рис. 3.7. Распределение скорости присоединения ДПР радона к аэрозолям по размерам аэрозольных частиц

Таблица 3.3

Соотношение между скоростями присоединения ДПР радона к ультрадисперсным аэрозольным частицам и частицам с диаметрами от 0,3 до 10 мкм

Время	d < 200 нм			d = 0,3–10 мкм
	$\bar{X}$ , ч <sup>-1</sup>	СГ, нм	СГО	$\bar{X}$ , ч <sup>-1</sup>
Термическая обработка пищи				
До начала	13	97,2	1,58	2
Горение	358	124	1,53	6
0–5 мин	598	148	1,44	10
11–15	295	132	1,56	6
41–45	89	115	1,38	4
56–60	40	96,8	1,44	4
Горение табачной сигареты				
До начала	28	104	1,39	3
Горение	140	117	1,36	14
0–5 мин	494	144	1,35	30
11–15	311	123	1,38	20
41–45	92	131	1,39	5
56–60	75	143	1,36	3
Курение электронной сигареты				
До начала	43	107	1,38	5
Горение	175	103	1,38	375
0–5 мин	53	94,2	1,52	37
11–15	46	89,9	1,48	5
41–45	79	116	1,43	7
56–60	60	103	1,37	6
Горение ароматических палочек				
До начала	33	96,1	1,36	2
Горение	240	113	1,39	27
0–5 мин	291	128	1,42	20
11–15	103	105	1,47	12
41–45	29	91,1	1,54	5
56–60	31	96,7	1,42	7

Окончание таблицы 3.3

Время	d < 200 нм			d = 0,3–10 мкм
	$\bar{X}$ , ч <sup>-1</sup>	СГ, нм	СГО	$\bar{X}$ , ч <sup>-1</sup>
Горение свечей				
До начала	17	89,6	1,45	3
Горение	299	83,3	1,37	5
0–5 мин	300	95,0	1,36	8
11–15	66	77,3	1,59	11
41–45	22	82,6	1,54	4
56–60	14	83,4	1,59	3
Противомоскитная спираль				
До начала	24	95,2	1,52	3
Горение	242	133	1,50	51
0–5 мин	279	125	1,49	62
11–15	149	119	1,46	39
41–45	47	97,3	1,42	11
56–60	31	95,4	1,45	7

Данные, представленные в табл. 3.3, демонстрируют, что для всех источников аэрозолей, использующих эффект горения или термообработки при высокой температуре, присоединение ДПР радона к аэрозольным частицам доминирует для аэрозолей с  $d < 200$  нм.

Таким образом продемонстрировано, что аэрозоли, в которых сосредоточена основная масса взвешенного в воздухе вещества, и аэрозоли, сорбирующие на своей поверхности природные радионуклиды продуктов распада радона, имеют различные размеры и, соответственно, будут откладываться в различных отделах респираторного тракта (рис. 3.8) [114, 115]. Так, радиоактивные аэрозоли будут преимущественно отлагаться в бронхиальном и альвеолярном отделах, в то время как крупнодисперсные аэрозоли, содержащие основную массу продуктов горения, будут откладываться в задних носовых проходах, носоглотке и гортани, откуда они поступают в желудочно-кишечный тракт.

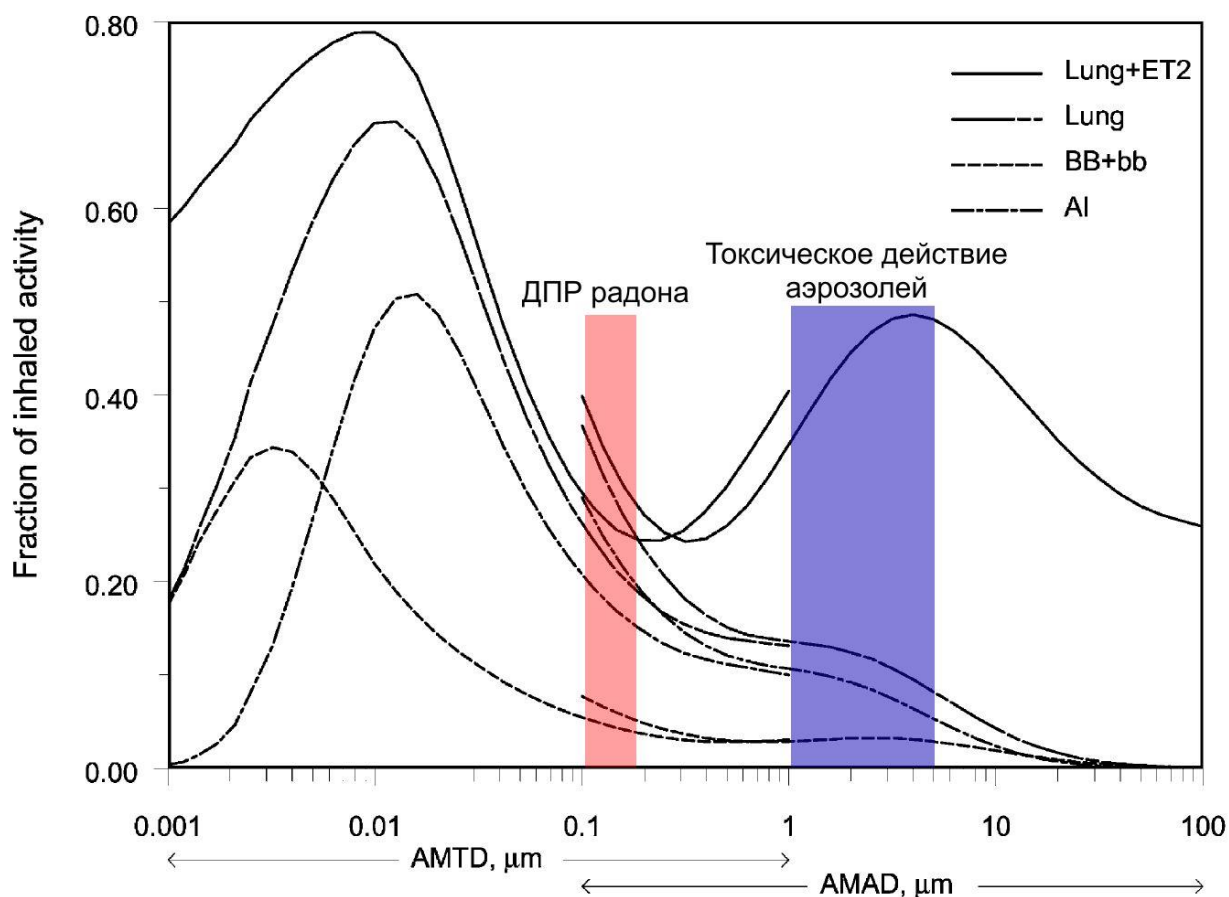


Рис. 3.8. Эффективность отложения аэрозолей в различных отделах респираторного тракта с указанием доминирующих размеров аэрозолей от бытовых источников

По результатам исследований, описанных в главе 3, можно сделать следующие выводы.

1. Использование бытовых источников аэрозолей (термическая обработка пищи, курение, свечи и др.) приводит к увеличению счетной концентрации аэрозольных частиц примерно на порядок. Увеличение счетной концентрации аэрозольных частиц преимущественно обусловлено генерированием ультрадисперсных аэрозолей с  $d < 200$  нм.
2. Для частиц в диапазоне 300–1 000 нм максимальная концентрация имеет место для электронных сигарет.
3. При использовании курительного устройства IQOS наблюдается незначительное (с  $1,3 \cdot 10^4$  до  $2,1 \cdot 10^4$  см<sup>-3</sup>) увеличение концентрации

ультрадисперсных частиц. Изменения концентраций аэрозолей в диапазоне 300–1 000 нм не отмечаются.

4. Для рассмотренных высокотемпературных бытовых источников аэрозолей счетный медианный диаметр лежит в диапазоне 64–92 нм при стандартном геометрическом отклонении 1,45–1,84. Максимальное значение СГО=2,22 наблюдается для электронной сигареты.
5. В распределении аэрозольных частиц от высокотемпературных бытовых источников по массе доминируют частицы в диапазоне 2–10 мкм. Максимум распределения преимущественно находится в области 2–5 мкм. Для электронной сигареты, приводящей к экстремально высоким массовым концентрациям аэрозолей ( $\sim 3000$  мкг/м<sup>3</sup>), максимальная концентрация наблюдается для частиц диаметром около 2 мкм.
6. Для аэрозольных частиц от высокотемпературных бытовых источников присоединение ДПР радона к аэрозолям обусловлено ультрадисперсными частицами с  $d < 200$  нм. Медианный диаметр  $X(d)$  при функционировании высокотемпературных источников аэрозолей в среднем составляет  $d \sim 130$  нм, что несколько выше, чем для амбиентных аэрозолей, присутствующих в воздухе ( $d \sim 90$ –105 нм).
7. Для электронной сигареты, основным процессом является испарение смеси глицерина и пропиленгликоля. Для нее доминирует присоединение ДПР радона к средне и крупнодисперсным аэрозолям с максимальной скоростью присоединения при  $d = 2$  мкм. Взаимодействие с ультрадисперсными аэрозолями менее выражено.

В результате может быть сформулировано первое защищаемое положение:

***Для высокотемпературных бытовых источников аэрозолей радиационное воздействие за счет присоединением ДПР радона обусловлено частицами с медианным диаметром 130 нм, а токсическое действие – частицами в диапазоне 2–5 мкм.***

## ГЛАВА 4. ИЗУЧЕНИЕ ФАКТОРОВ, ВЛИЯЮЩИХ НА УЛАВЛИВАНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ ФИЛЬТРАМИ ПЕТРЯНОВА

### 4.1. Характеристики атмосферы при изучении взаимодействия аэрозолей с материалами фильтров

Важным свойством аэрозольных частиц является их размер. Информация о размере частиц радиоактивного аэрозоля важна для оценки внутренней дозиметрии при их ингаляционном поступлении [115, 116].

В этом исследовании различные распределения аэрозолей по размеру (счетное, по удельной площади поверхности или массе) сравниваются с размерным распределением по активности продуктов распада радона при различных концентрациях аэрозолей. Для измерения распределения активности по размерам были использованы различные средства измерений, такие как каскадные импакторы и диффузионная батарея. Распределение аэрозоля по размеру, массе и удельной площади поверхности в диапазоне от 5 нм до 10 мкм было измерено с помощью диффузионного аэрозольного спектрометра [118].

Эксперименты проводились в радоновой камере объемом 2 м<sup>3</sup>. При проведении экспериментов типичные значения температуры и относительной влажности составляли  $24 \pm 2$  °С и  $45 \pm 5\%$  соответственно. Объемная активность радона внутри камеры находилась в диапазоне от 35000 до 40000 Бк/м<sup>3</sup>. Данное значение контролировалось при помощи радон-монитора AlphaGUARD PQ2000 PRO.

Для «чистой» камеры радона (без введения искусственных аэрозолей) коэффициент равновесия составляет  $\sim 0,1$ . После введения аэрозоля в камеру фактор равновесия увеличился до 0,3. Неприсоединенная фракция ДПР радона в чистом боксе при нормальных условиях составляет  $f_p = 0,4-0,6$  при ЭРОА 2000–4000 Бк/м<sup>3</sup> [106]. Зависимость неприсоединенной фракции от концентрации аэрозольных частиц продемонстрирована на рис. 4.1.

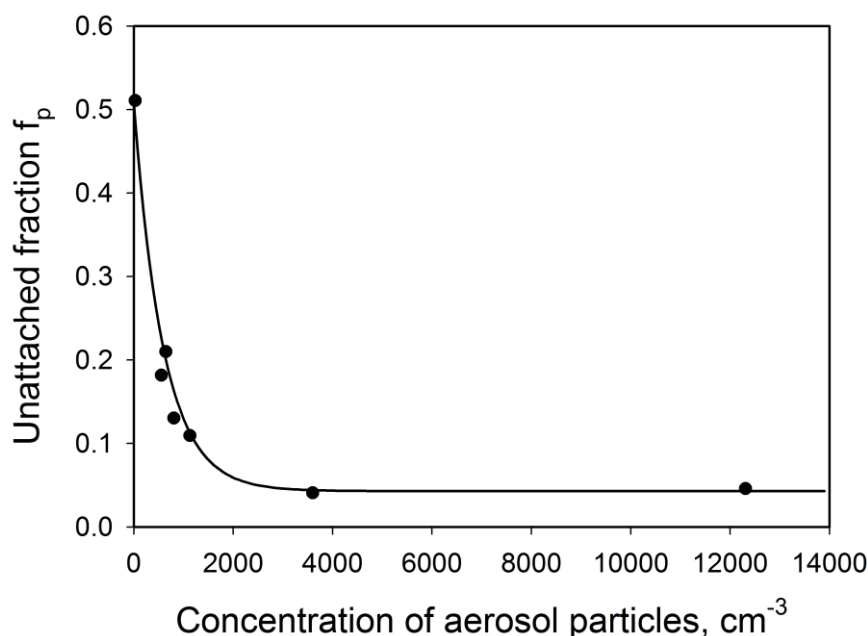


Рис. 4.1. Зависимость неприсоединенной фракции от концентрации аэрозольных частиц

Для исследования различных распределений радиоактивных аэрозолей в радоновой камере использовался дополнительный источник аэрозоля (испаритель-генератор аэрозоля на базе электронной сигареты), активируемый помпой с расходом воздуха 1 л/мин. Использование генератора аэрозоля дает возможность исследовать различные распределения радиоактивных аэрозолей в контролируемых условиях по концентрации аэрозоля.

Для измерения распределения аэрозолей по размерам при АМТД  $d_{th} \leq 0,1$  мкм [102] использовалась диффузионная батарея экранного типа GSA, состоящая из пакета сетчатых экранов [105, 106, 117].

Согласно теории фильтрации была рассчитана проницаемость для линейной скорости воздуха 0,25 м/с [106, 117]. Использованные сетчатые экраны были изготовлены из латуни с плотностью  $8,5 \text{ г см}^{-3}$ , с толщиной проволоки 65 мкм и раскрытием 100 мкм [117]. Диапазон значений  $d_{50\%}$  для первого – двадцатого каскадов батареи с сетчатыми экранами такого типа составлял от 1,5 до 16,5 нм.

В работе также использовались два типа каскадных импакторов – Марк-3 и АИП-2. Каскадный импактор Марк-3 состоит из семи каскадов, а



АИП-2 – из пяти каскадов из нержавеющей стали с отверстиями разных размеров. Детальное описание данных импакторов приведено в главе 2.

Расчет ЭРОА радона по  $\alpha$ -активности осевшей на улавливающих элементах диффузионной батареи и каскадных импакторов производился с использованием модифицированного метода Кузнецца [120].

На рисунке 4.2 показано изменение концентрации частиц, по данным измерений ДАС. Концентрация аэрозоля в ходе экспериментов находилась в диапазоне от  $2,0 \cdot 10^3$  до  $2,5 \cdot 10^5$   $\text{см}^{-3}$ . Максимальная концентрация ультрадисперсных частиц с размером менее 200 нм составляет примерно  $2 \cdot 10^5$   $\text{см}^{-3}$ , в то время как максимальные концентрации частиц в диапазоне размеров 0,2–0,7 и 2,5 мкм составляли около 1 600 и 1 300  $\text{см}^{-3}$  соответственно. Максимальная концентрация УДЧ была достигнута непосредственно после окончания введения аэрозоля, однако концентрация частиц в диапазоне размеров от 0,2 до 0,7 мкм начала увеличиваться с началом уменьшения концентрации УДЧ. Задержка до достижения максимальной концентрации этих частиц составляла около 1–2 ч. Для достижения максимальной концентрации частиц 2,5 мкм требовалось около одного часа.

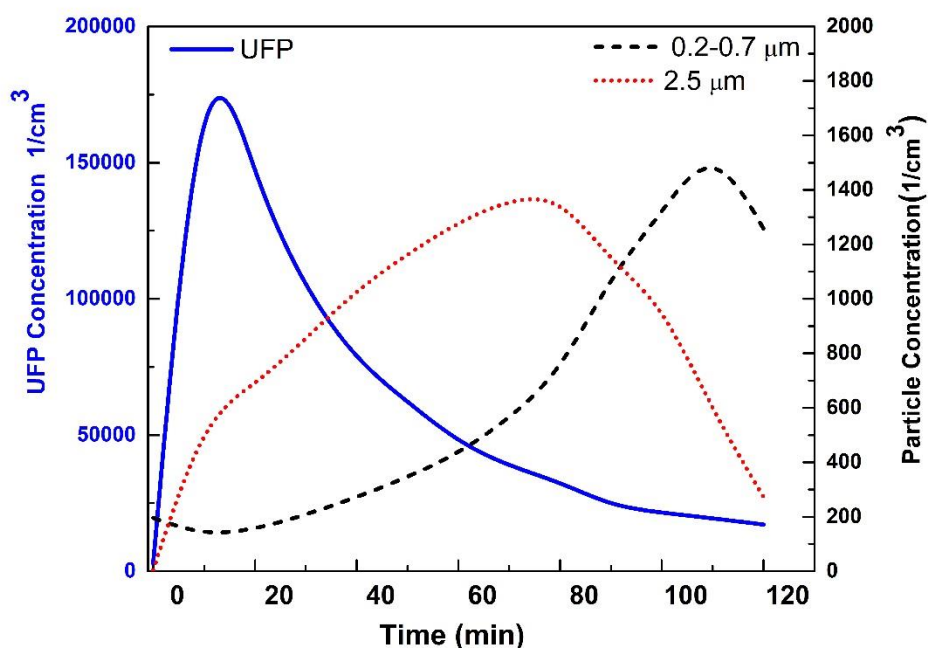


Рис. 4.2. Зависимость концентраций ультрадисперсных частиц и аэрозольных частиц в диапазоне 0,2–0,7 и 2,5 мкм от времени после поступления аэрозолей в бокс.

Соответствующие размерные распределения по количеству частиц, удельной площади поверхности и массе, рассчитанные в предположении сферичности частиц, показаны на рис. 4.3. До и после поступления аэрозолей частицы находятся практически в одном и том же диапазоне размеров, однако может наблюдаться перераспределение размерного распределения, например, из-за коагуляции [1, 3, 6, 119].

Для чистой радоновой камеры счетный медианный диаметр (СМД) и СГО составляют 119 нм и 1,42 соответственно, тогда как массовый и поверхностный медианный диаметры (ММД и ПМД) составляют 162 и 145 нм с СГО 1,5 и 1,34 соответственно. Через 15 мин после поступления аэрозолей для удельной площади поверхности имеются две моды при ПМД ~140 нм (СГО = 1,25) для моды аккумуляции и крупнодисперсной моды ПМД = 5 мкм (СГО = 1,6).

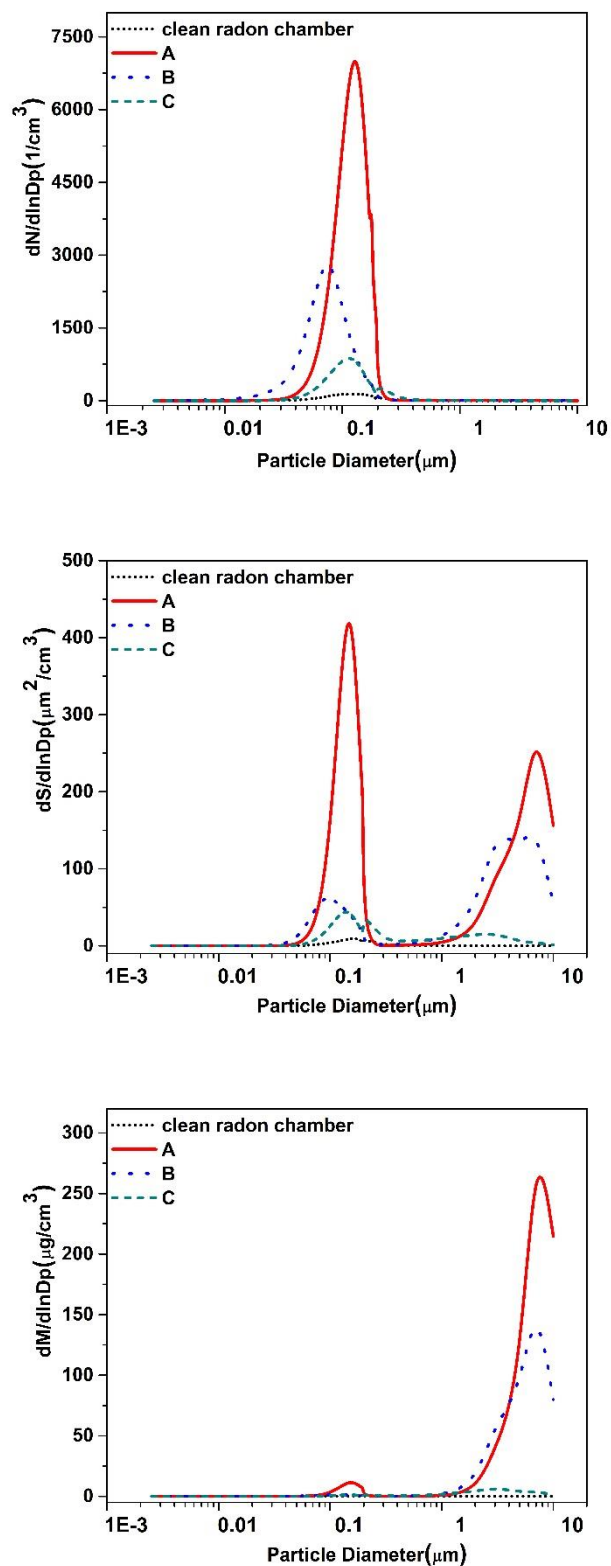


Рис. 4.3. Размерные распределения по количеству частиц, удельной площади поверхности и массе (кривые А, В и С соответствуют времени 15, 60 и 80 мин после поступления аэрозоля)

Это может быть связано с тем, что частицы, поступающие в камеру, не являются монодисперсными, а имеют распределение по размерам в диапазоне от 10 нм до 10 мкм, что подтверждается данными, приведенными в главе 3.

Результаты измерений размерного распределения, проведенные при помощи диффузионной батареи, показаны на рис. 4.4.

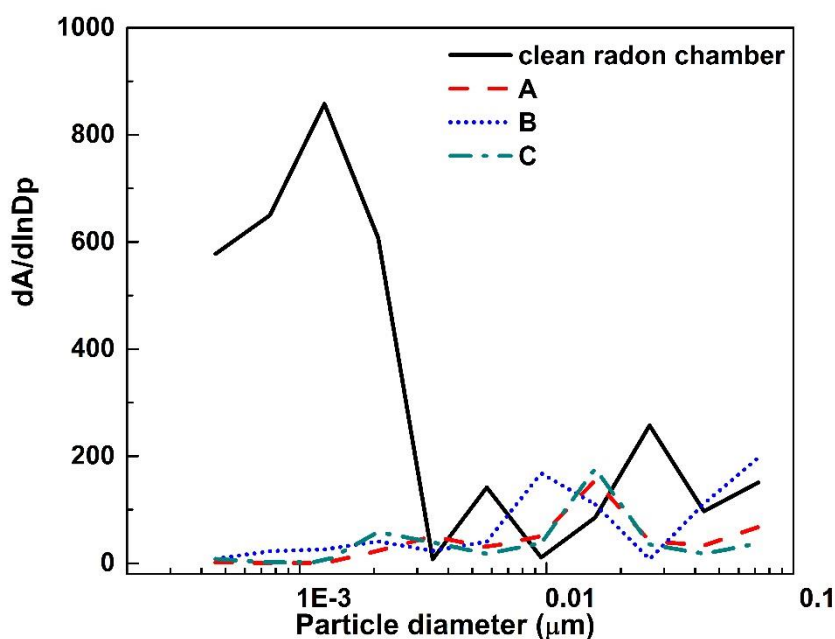


Рис. 4.4. Распределение активности аэрозольных частиц по размерам по результатам измерений с помощью диффузионной батареи для чистой радоновой камеры и в различное время после поступления (кривые А, В, С соответствуют времени 15, 60 и 80 мин после поступления аэрозоля).

Эти результаты показали, что при низкой концентрации аэрозолей (чистая радоновая камера) большая часть активности продуктов распада радона связана с частицами с АМТД  $\sim 1$  нм (неприсоединенные продукты распада). После поступления аэрозолей в радоновую камеру активность неприсоединенных ДПР снизилась практически до нуля, но было отмечено, что активность аэрозолей с АМТД в диапазоне 5–20 нм в течение одного часа после поступления аэрозоля изменилась незначительно.

На рис. 4.5 показано изменение ЭРОА радона в диапазоне размеров 0,5–2 нм и 2–100 нм для чистой радоновой камеры и после поступления аэрозоля. После поступления аэрозоля активность неприсоединенных продуктов распада значительно снизилась из-за осаждения аэрозолей с АМТД  $\sim 1$  нм на поверхность более крупных аэрозолей. Изменение активности аэрозолей в диапазоне 2–100 нм незначительно.

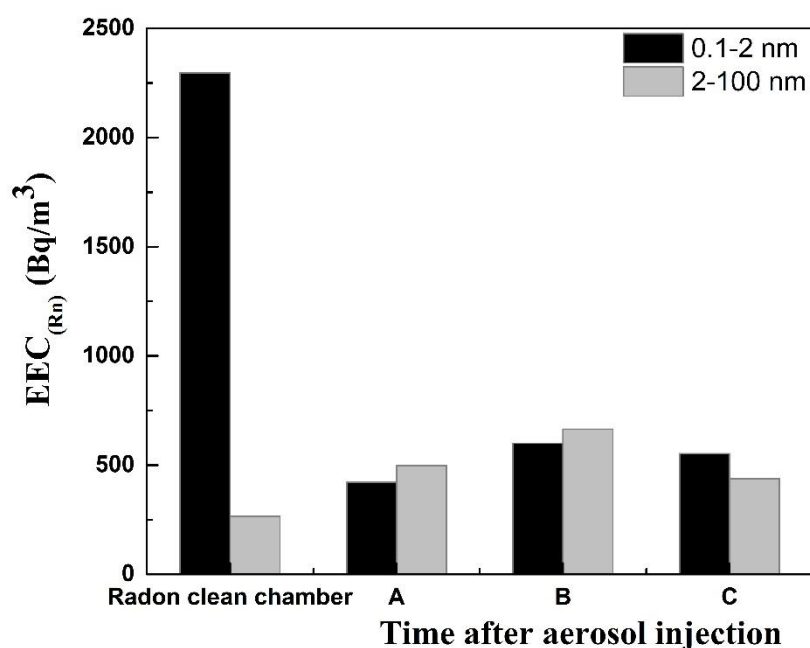


Рис. 4.5. ЭРОА радона в диапазоне размеров аэрозолей 0,5–2 нм и 2–100 нм до и после поступления аэрозоля (столбцы А, В, С соответствуют времени 15, 60 и 80 мин после поступления аэрозоля)

На рис. 4.6 представлено распределение активности аэрозолей, измеренное с помощью двух типов каскадных импакторов. Это распределение практически не зависит от времени с момента поступления аэрозолей в радоновую камеру. Параметрами распределения активности по размерам являются активностный медианный аэродинамический диаметр, АМАД  $\sim 500$ – $700$  нм и СГО = 1,5.

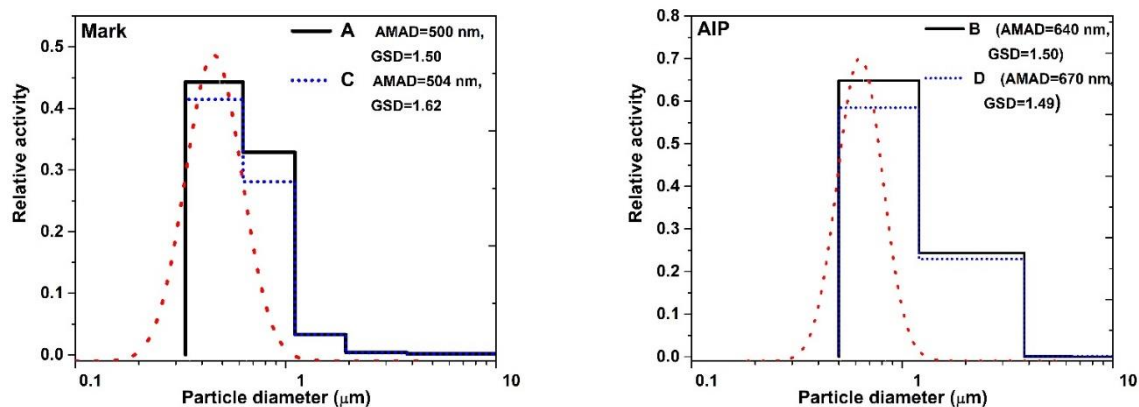


Рисунок 4.6. Распределение активности по размерам, измеренное двумя типами каскадных импакторов (Марк-3 и АИП-2) после поступления аэрозольных частиц. Сплошные линии – распределение активности на каскадах, пунктир – рассчитанное логнормальное распределение (кривые А, В, С, D соответствуют времени 15, 60, 80 и 120 минут после поступления аэрозоля).

В таблице 4.1 представлены медианные диаметры и СГО для распределений аэрозольных частиц по количеству, массе, удельной поверхности и активности. После поступления аэрозоля распределение по удельной площади поверхности аэрозоля имело бимодальное распределение. Медианный диаметр крупнодисперсной моды изменялся с 5 мкм (СГО = 1,6) до 2 мкм (СГО = 2,5) за интервал времени 15–120 мин после поступления аэрозоля. Основной причиной данного эффекта является гравитационное осаждение аэрозолей на стенках радоновой камеры.

Сравнение распределения активности с распределением по количеству, удельной площади поверхности и массе показало, что оно наиболее близко соответствует среднему распределению по удельной поверхности, но не точно соответствует ни одному из перечисленных распределений. Основной причиной такого различия может быть полидисперсность исследуемой аэрозольной смеси. Данные по расчету скорости присоединения ДПР радона к аэрозолям, возникающим при использовании электронной сигареты (глава 3) для периода активного использования сигареты и первых 5 минут после прекращения ее действия подтверждают данную гипотезу.

Таблица 4.1

Медианные диаметры и СГО для распределений введенных аэрозольных частиц по количеству, массе, удельной поверхности и активности.

	А (15 мин)		В (60 мин)		С (80 мин)		D (120 мин)	
	Мелко дисп.	Крупно дисп.	Мелко дисп.	Крупно дисп.	Мелко дисп.	Крупно дисп.	Мелко дисп.	Крупно дисп.
ММД (нм)	146	5800	139	5400	125	4900	138	3600
СГО	1,23	1,4	1,29	1,46	1,36	1,55	1,28	1,81
ПМД (нм)	140	4900	124	4400	111	3600	124	1900
СГО	1,25	1,6	1,37	1,26	1,41	1,87	1,35	2,50
СМД (нм)	123	н/д	95	н/д	85	н/д	90	н/д
СГО	1,34	н/д	1,5	н/д	1,5	н/д	1,49	н/д
АМАД (нм)	500	н/д	640	н/д	504	н/д	670	н/д
СГО	1,50	н/д	1,50	н/д	1,62	н/д	1,49	н/д

н/д – нет данных

Наблюдаемые различия во временных характеристиках динамики изменения параметров распределения размерного распределения аэрозолей, представленных в табл. 3.2 и 4.1 объясняются условиями применения источников аэрозольных частиц: замкнутый бокс при измерениях распределения по активности и открытое пространство при изучении динамики концентрации аэрозолей от бытовых источников.

#### **4.2. Влияние концентрации аэрозольных частиц на сдвиг равновесия в цепочке распада дочерних продуктов распада радона.**

В данном разделе рассмотрено влияние концентрации аэрозольных частиц на различные физические параметры короткоживущих продуктов распада радона, такие как объемная активность, коэффициент равновесия, неприсоединенная фракция, скорость присоединения и сдвиг равновесия в цепочке короткоживущих продуктов распада радона [121]. Соотношение

активностей  $^{218}\text{Po}$ : $^{214}\text{Pb}$ : $^{214}\text{Bi}$  для неприсоединенных и присоединенных продуктов распада радона исследовано при различных концентрациях аэрозольных частиц.

Условия проведения экспериментов соответствовали условиям, описанным в предыдущих параграфах. Контроль концентрации и размерного распределения аэрозольных частиц в радоновом боксе, как и в предыдущих экспериментах, проводился при помощи дифференциального аэрозольного спектрометра ДАС.

Объемная активность радона внутри радонового бокса составляла от 12 000 до 16 000 Бк м<sup>-3</sup>. Для чистого радонового бокса (без поступления искусственных аэрозолей) коэффициент равновесия  $F$  составляет  $\sim 0,1$ . Неприсоединенная фракция продуктов распада радона в чистом боксе в нормальных условиях составляет 0,40–0,70 при ЭРОА 1 500–4 000 Бк·м<sup>-3</sup>. Для определения неприсоединенной фракции использовались диффузионная батарея с тремя экранами, играющая роль диффузионного экрана, улавливающего частицы с АМТД = 1–3 нм, и три финишных аналитических фильтра АФА-РСП-20 для улавливания присоединенных продуктов распада радона. Схема устройства приведена на рис. 4.7.

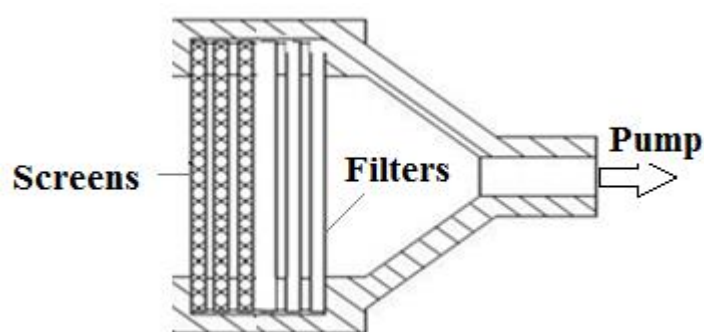


Рис. 4.7. Конструкция пробоотборного устройства для отдельной регистрации неприсоединенных ДПР радона и ДПР радона, осевших на аэрозольных частицах



Объемные активности продуктов распада радона внутри стандартного радонового бокса определяли методом Томаса [122]. Объемную активность неприсоединенной фракции ДПР радона рассчитывали по измерениям кривой распада на экране диффузионной батареи, а ОА ДПР радона, ассоциированных с аэрозолями, по результатам измерений фильтров. Суммарное значение ОА ДПР радона является суммой ОА присоединенных и неприсоединенных фракций.

На рис. 4.8 приведены результаты для различных концентраций аэрозольных частиц. Ось абсцисс показывает номер эксперимента до и в разное время после поступления аэрозоля. Таблица на рис. 4.8 показывает время проведения каждого эксперимента. В табл. 4.2 представлены отношения активностей  $^{218}\text{Po}:^{214}\text{Pb}:^{214}\text{Bi}(^{214}\text{Po})$  для различных экспериментальных условий.

В чистом радоновом боксе (эксперимент № 1) концентрация аэрозольных частиц составляет  $\sim 2400 \text{ см}^{-3}$ . Поэтому,  $^{218}\text{Po}$  имеет самую высокую активность в неприсоединенной фракции, как показано (рис. 4.8) Для этой фракции отношения ОА ДПР радона составляют 1:0,31:0,06, потому что большая часть активности образующегося  $^{218}\text{Po}$  является неприсоединенной вследствие малой концентрации аэрозольных частиц, с которыми атомы полония могли бы взаимодействовать за время их существования. В эксперименте № 1 отношение активностей присоединенных ДПР радона  $^{218}\text{Po}:^{214}\text{Pb}:^{214}\text{Bi}(^{214}\text{Po})$  составляет 1:1,43:1,03 с максимальной активностью для  $^{214}\text{Pb}$ . В этом случае общая неприсоединенная фракция ЭРОА радона составляет  $\sim 0,45$ , а неприсоединенные доли  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}(^{214}\text{Po})$  составляют 0,78, 0,44 и 0,17 соответственно (рис. 4.8). После поступления аэрозолей бокс выдерживался в течение времени, достаточного количество для равномерного распределения аэрозоля в боксе (3 ч).

1	Clean box
2	3 hours
3	4 hours
4	5 hours
5	23 hours
6	26 hours
7	29 hours
8	30 hours
9	45 hours

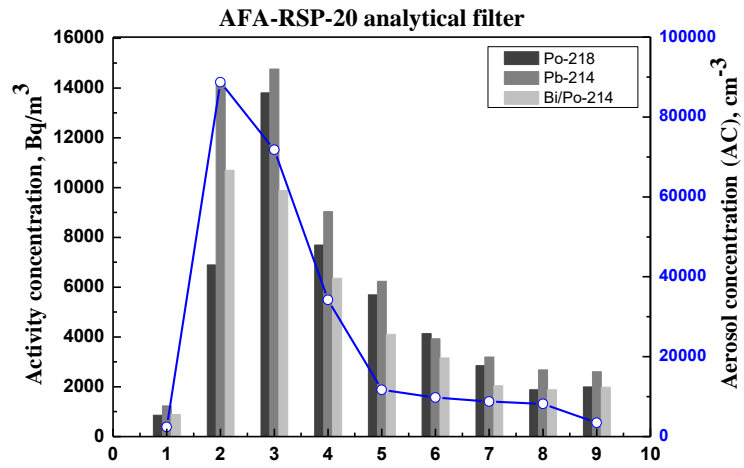
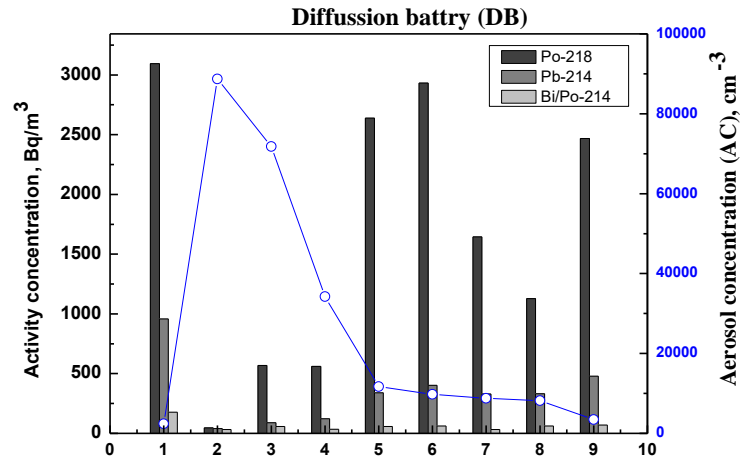


Рис. 4.8. Объемная активность ДПР радона для неприсоединенной и присоединенной фракций в зависимости от концентрации аэрозолей

Таблица 4.2

Сдвиг равновесия в цепочке короткоживущих ДПР радона  $^{218}\text{Po}$ : $^{214}\text{Pb}$ : $^{214}\text{Bi}$  в зависимости от концентрации аэрозольных частиц.

№	Время, ч	NC*, $\text{см}^{-3}$	ЭРОА Rn, Бк/ $\text{м}^3$	АМТД = 1 нм			Присоединенная фракция			Сумма		
				$^{218}\text{Po}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{218}\text{Po}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{218}\text{Po}$	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$
1	Чистый	2400	1953	1	0,31	0,06	1	1,43	1,03	1	0,55	0,27
2	3	88000	12133	1	0,86	0,70	1	2,05	1,55	1	2,05	1,55
3	4	72000	12943	1	0,16	0,10	1	1,07	0,72	1	1,03	0,69
4	5	34000	8022	1	0,22	0,06	1	1,17	0,83	1	1,11	0,78
5	23	12000	5853	1	0,13	0,02	1	1,09	0,72	1	0,79	0,50
6	26	10000	4202	1	0,14	0,02	1	0,95	0,76	1	0,61	0,46
7	29	9000	3082	1	0,20	0,02	1	1,12	0,72	1	0,79	0,46
8	30	8000	2611	1	0,30	0,05	1	1,42	1,00	1	1,00	0,65
9	45	3500	2846	1	0,19	0,03	1	1,31	1,00	1	0,69	0,46

\* NC – концентрация аэрозольных частиц

Аналогичные измерения объемной активности неприсоединенных и присоединенных ДПР радона повторяли в течение 3–45 ч после поступления аэрозолей по мере уменьшения концентрации аэрозольных частиц за счет их естественного оседания на стенки бокса.

В первом эксперименте после поступления аэрозоля (эксперимент № 2, NC = 88000  $\text{см}^{-3}$ ) на диффузионной батарее практически не было активности ДПР радона. Неприсоединенная фракция составляла менее 0,007 для  $^{218}\text{Po}$  и не более 0,003 для  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  ( $^{214}\text{Po}$ ) и ЭРОА радона. Отношение объемных активностей неприсоединенных ДПР радона составляло 1:0,86:0,7 (табл. 2). В этот момент концентрация аэрозоля составляла ~ 88000  $\text{см}^{-3}$ . Отношение активностей присоединенных ДПР радона  $^{218}\text{Po}$ : $^{214}\text{Pb}$ : $^{214}\text{Bi}$  ( $^{214}\text{Po}$ ) составляет 1:2,05:1,55 с максимальной активностью для  $^{214}\text{Pb}$ . Самая высокая активность для присоединенных продуктов распада была для  $^{214}\text{Pb}$ , затем  $^{214}\text{Bi}$  ( $^{214}\text{Po}$ ) и, наконец,  $^{218}\text{Po}$ .

Со временем происходит процесс осаждения аэрозолей внутри бокса радона, и концентрация аэрозоля снижается (рис. 4.8). В то же время генерируются свежие ДПР радона. Следовательно, комбинация различных процессов со сложными механизмами, таких как осаждение на стенки путем седиментации или диффузии, присоединения к аэрозольным частицам и образование ядер отдачи, контролирует следующие физические параметры: ОА ДПР радона (рис. 4.8), неприсоединенную фракцию, коэффициент равновесия (рис. 4.9) и ЭРОА радона (рис. 4.10, табл. 4.2). Представленные данные еще раз указывают на то, что равновесие в цепочке ДПР радона следует рассматривать отдельно в каждом измерении в зависимости от концентрации и размера аэрозолей [121].

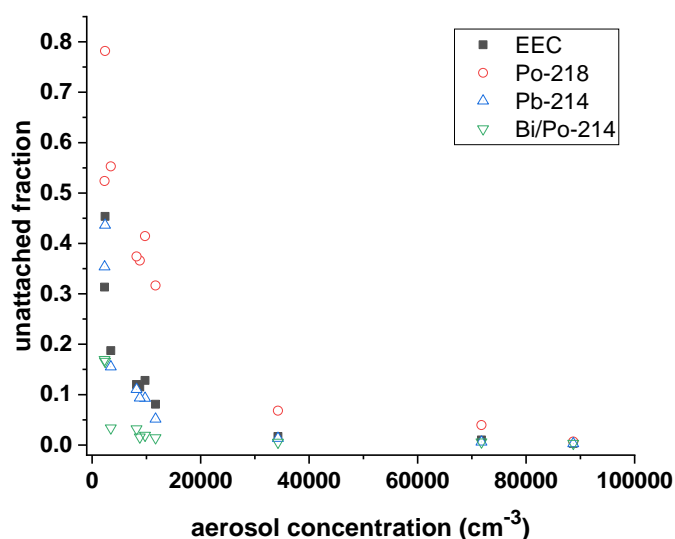


Рис. 4.9. Неприсоединенная фракция ЭРОА радона и индивидуальных ДПР радона в зависимости от концентрации аэрозольных частиц.

С увеличением концентрации аэрозольных частиц увеличивается и ЭРОА радона (рис. 4.10). При высокой концентрации аэрозоля процесс присоединения ДПР радона к аэрозольным частицам происходит быстрее, чем осаждение неприсоединенных частиц на поверхности, что и приводит к существенному увеличению ЭРОА радона. Однако даже при высокой концентрации частиц аэрозоля равновесие не достигается ( $F < 1$ ), поскольку

определенное количество присоединенной фракции аэрозоля все равно теряется из-за оседания на стенки бокса. В ходе экспериментов средняя ОА составляла  $15\,000 \pm 1\,650$  Бк  $\text{м}^{-3}$  без существенных изменений. Следовательно, коэффициент равновесия  $F$  имеет ту же зависимость, что и ЭРОА радона.

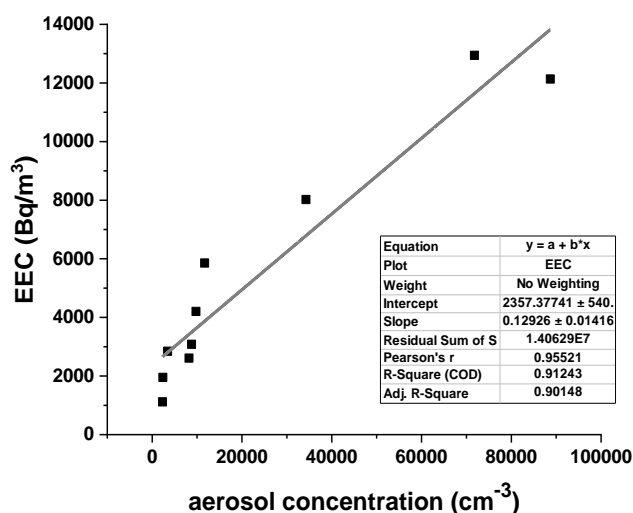


Рис. 4.10. Зависимость ЭРОА радона от концентрации аэрозольных частиц в боксе

На рис. 4.11 показана взаимосвязь доли неприсоединенной фракции с изменением коэффициента радиоактивного равновесия при изменении концентрации аэрозоля. Такая связь рассматривалась в [50, 123, 124]. Низкий коэффициент равновесия (0,1–0,2) при высоком значении доли неприсоединенной фракции наблюдается при низкой концентрации аэрозоля ( $1\,000$ – $3\,000$   $\text{см}^{-3}$ ). При использовании дополнительного источника аэрозоля доля неприсоединенной фракции становится незначительной в случае, когда концентрация аэрозоля превышает  $70\,000$   $\text{см}^{-3}$ . С другой стороны, при этих концентрациях коэффициент равновесия значительно возрастает  $F = 0,8$ – $0,9$ . При последующем уменьшении концентрации аэрозоля снова наблюдаются низкие значения коэффициента радиоактивного равновесия  $F = 0,1$ – $0,2$ . Была предпринята попытка проанализировать зависимость неприсоединенной фракции от коэффициента радиоактивного равновесия (рис. 4.11).

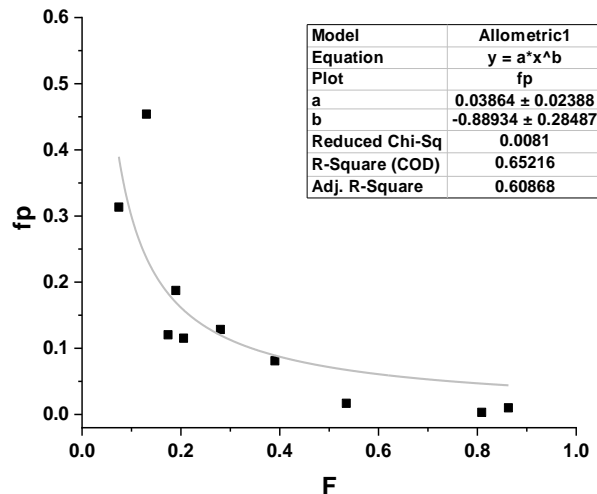


Рис. 4.11. Взаимосвязь неприсоединенной фракции и коэффициента радиоактивного равновесия  $F$  при изменении концентрации аэрозоля

Была получена отрицательная корреляция между неприсоединенной фракцией  $f_p$  и коэффициентом равновесия  $F$ , которая может быть выражена как  $(f_p = 0,0386 F^{-0,89})$  ( $R^2 = 0,65$ ). Эти результаты сопоставимы с результатами, полученными [124] для воздуха в помещении ( $f_p = 0,06 F^{-0,64}$ ) ( $R^2 = 0,65$ ) и [123] для атмосферы на гидроэлектростанции  $f_p = 0,0455 F^{-1,25}$  и в атмосфере шахты  $f_p = 0,016 F^{-1,17}$ .

Зависимость неприсоединенной фракции ДПР радона, от средней скорости присоединения  $\bar{X}$ , представлена на рис. 4.12. Наблюдается отрицательная зависимость  $f_p = 1,65 X^{-0,735}$  с высоким коэффициентом корреляции ( $R^2 = 1$ ). Результаты находятся в хорошем согласии с результатами [50, 125].

Полученные результаты показывают, что для интерпретации результатов измерения ДПР радона необходимо учитывать различия в сдвиге равновесия между отдельными продуктами распада. Сдвиг равновесия между ДПР радона следует рассматривать отдельно в каждом измерении, в зависимости от концентрации аэрозолей и их распределения по размерам.

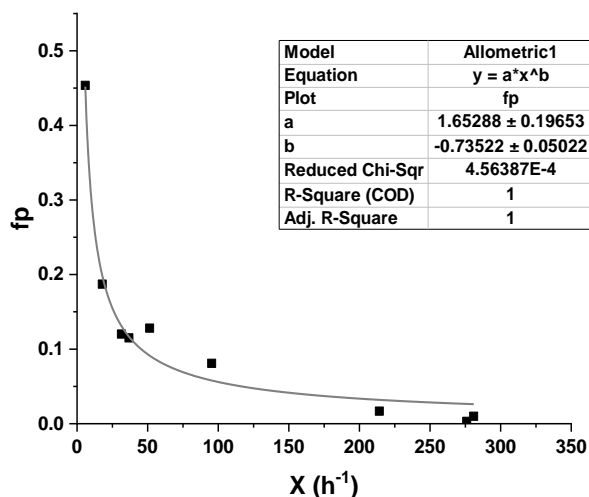


Рис. 4.12. Зависимость доли неприсоединенной фракции ДПР радона от средней скорости присоединения  $\bar{X}$

### 4.3. Изучение радиометрической эффективности фильтров Петрянова при различных условиях

Как отмечалось в обзоре (глава 1) для фильтров Петрянова, представляющих основной интерес, толщина слоя фильтрующего материала ФП может варьироваться от долей миллиметра до нескольких миллиметров. Когда такие фильтрующие слои спрессованы, их толщина уменьшается до долей миллиметра, однако сопротивление потоку газа при этом резко возрастает. Плотность поверхности колеблется от 1 до 5 мг/см<sup>2</sup>. Высокая эффективность ФП объясняется толщиной волокон. Известно, что чем тоньше волокно, тем выше эффективность удаления частиц [81–84, 95]. Обычно толщина стандартных волокон, используемых для изготовления ФП, варьируется от 0,6 до 7 мкм. Наиболее широко используемыми являются волокна диаметром 1,5 мкм.

В настоящей работе вследствие широкого использования аналитических фильтров ФП, особенно в радиационной защите, было проведено экспериментальное исследование для проверки радиометрической эффективности трех типов аналитических фильтров АФА-РСП-20, АФА-

РМП-20 и АФА-РМВ-20 при различных скоростях фильтрации воздуха и при различной концентрации аэрозолей [126]. Условия проведения эксперимента не отличались от условий, описанных в предыдущем параграфе.

Были исследованы две промышленные версии (старая и новая) аналитических фильтров АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20, различающихся по времени и способу производства, и один относительно новый тип фильтра АФА-РМВ-20. Фильтры АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 нового типа были изготовлены не более чем за 6 месяцев до проведения исследований, а старый – почти десять лет назад. Фильтр типа АФА-РМП-20 имеет такую особенность, как электростатическое осаждение аэрозолей на волокнах фильтра. Длительное хранение может привести к уменьшению электростатического заряда и, как следствие, к снижению фильтрующей способности фильтра. Для АФА-РСП-20 электростатическое осаждение не так существенно, как для фильтра типа АФА-РМП-20. Паспортные характеристики, описание и фотографии стандартных фильтров АФА-РСП-20, АФА-РМП-20 и АФА-РМВ-20 приведены в главе 1.

Концентрация и размерное распределение аэрозольных частиц непрерывно измерялись с помощью прибора ДАС до и после поступления аэрозолей. На рис. 4.13 представлено изменение во времени концентрации ультрадисперсных частиц ( $d \leq 0,2$  мкм) и частиц в диапазоне размеров 0,2–0,5 мкм и  $d = 2$  мкм. На этом рисунке точки А, В и С соответствуют точкам проверки эффективности фильтров. Точка А соответствует измерениям до поступления аэрозоля, счетная концентрация  $N_C = 10^3$  см<sup>-3</sup>, точка В соответствует времени через 15 мин,  $N_C = 10^5$  см<sup>-3</sup> и С – 60 мин после поступления,  $N_C = 7 \cdot 10^4$  см<sup>-3</sup>.

Распределение аэрозольных частиц в радоновой камере по количеству и удельной поверхности для трех выбранных точек показано на рис. 4.14.



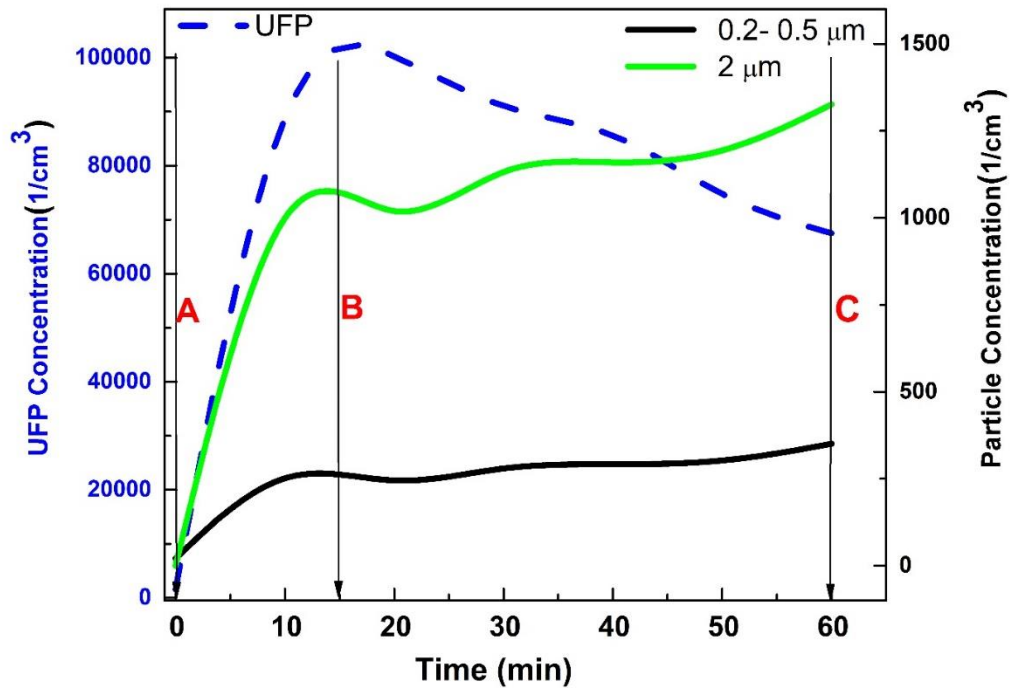


Рис. 4.13. Зависимость от времени концентрации УДЧ (левая ось ординат) и частиц в диапазоне от 0,2–0,5 и 2 мкм (правая ось ординат)

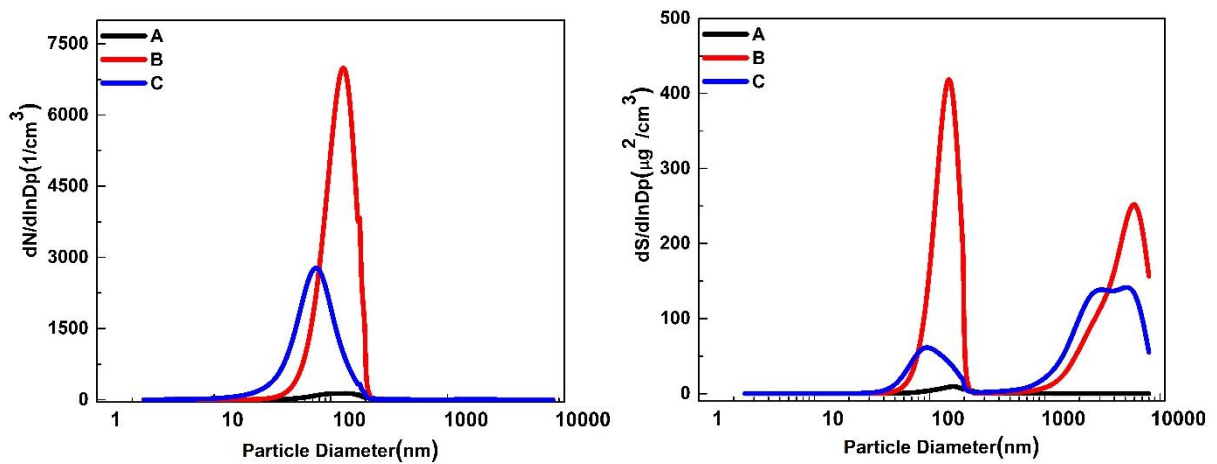


Рис. 4.14. Распределение аэрозольных частиц в радоновой камере по количеству и удельной поверхности для трех выбранных точек

Очевидно, что более 98 % аэрозольных частиц имеют размер менее 0,2 мкм. Счетный медианный диаметр для точек А и В составляет ~ 0,119 мкм и 0,124 мкм с СГО равным 1,42 и 1,32, соответственно. Для точки С СМД

сместился до 0,085 мкм с СГО = 1,5. Для распределения по удельной поверхности частиц наблюдается, как и в предыдущих случаях, явно бимодальное распределение.

Распределения активности по размерам в выбранных контрольных точках были измерены с помощью диффузионной батареи и стандартного импактора АИП-2. Распределение активности по размерам представлено на рис. 4.15. На этом рисунке в очередной раз явно наблюдается влияние аэрозолей на неприсоединенную фракцию ДПР радона. При низкой концентрации аэрозолей (А) почти 80 % активности ДПР радона связано с аэрозольными частицами с АМТД ~ 1 нм. После поступления аэрозолей в экспериментальную радоновую камеру активность неприсоединенных продуктов распада снизилась практически до нуля, но наблюдается повышение активности аэрозолей с АМТД ~ 10 нм. Наличие радиоактивных аэрозолей в диапазоне от 0,2 до 10 мкм подтверждается результатами измерений каскадным импактором.

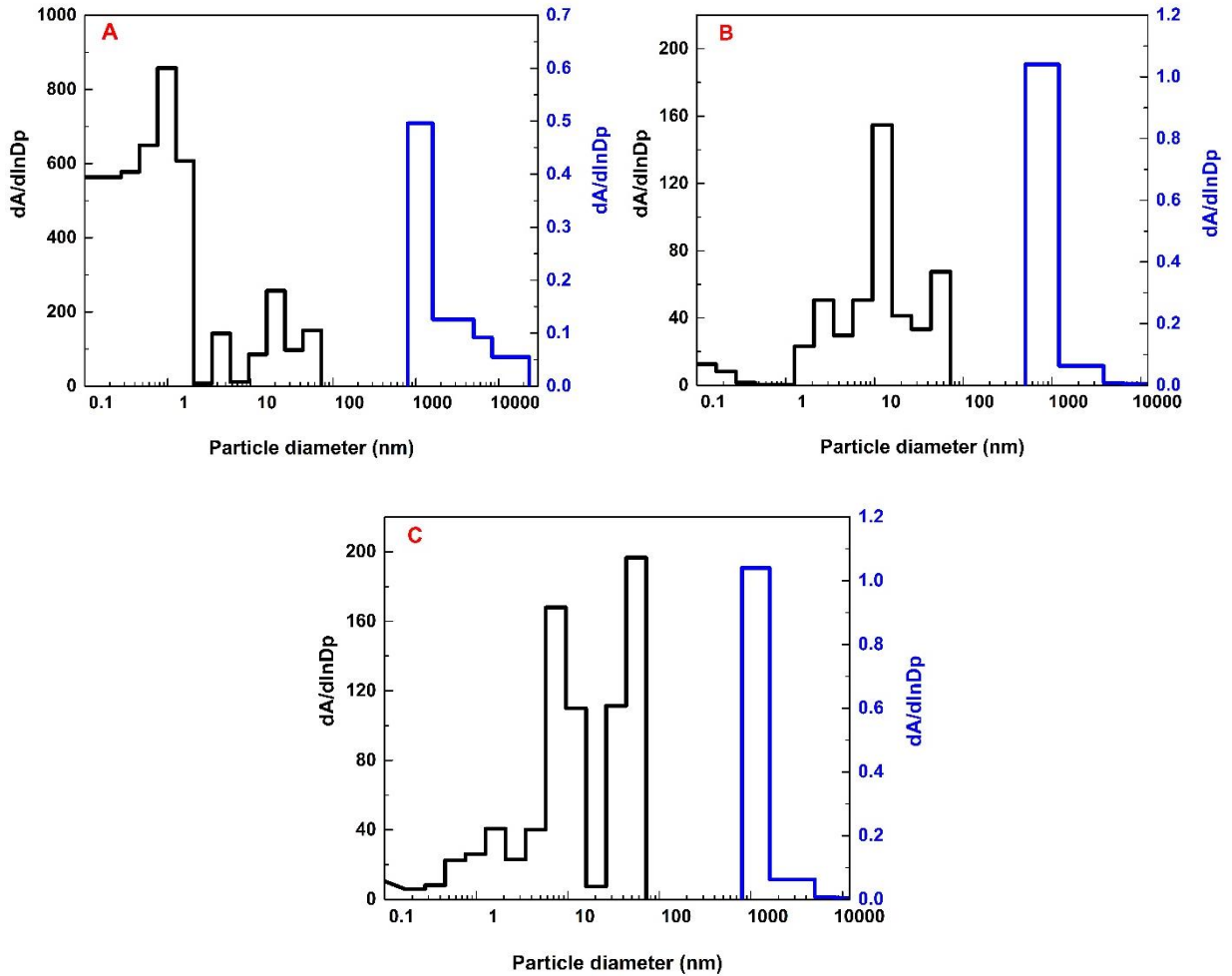


Рис. 4.15. Размерное распределение аэрозолей по активности до поступления аэрозолей (А) и через 15 (В) и 60 (С) мин после поступления

Для выбранных точек по времени производился отбор радиоактивных аэрозолей на пакет из трех одинаковых аэрозольных фильтров. Для каждого из фильтров измерялась активность по  $\alpha$ -излучению и по методу Кузнеця рассчитывалось значение ЭРОА радона. Это было необходимо в связи с тем, что ДПР радона имеют малый период полураспада. Надо было привести результаты измерений к моменту окончания пробоотбора. Эксперименты показали, что для всех исследуемых фильтров пакет из трех фильтров обеспечивает улавливание практически 100 %-ов активности. Эффективность аэрозольного фильтра оценивалась как отношение значения ЭРОА радона, рассчитанного на основании измерения первого фильтра к суммарному

значению ЭРОА радона, определенного на основании измерений всего пакета из трех фильтров.

На рис. 4.16 и 4.17 показано влияние скорости фильтрации воздуха при различных концентрациях аэрозоля на радиометрическую эффективность фильтров АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20. Радиометрическая эффективность фильтров РСП при различных скоростях воздуха (25, 33 и 42 см/с) увеличивается с увеличением концентрации аэрозоля как для фильтров нового типа, так и для старого.

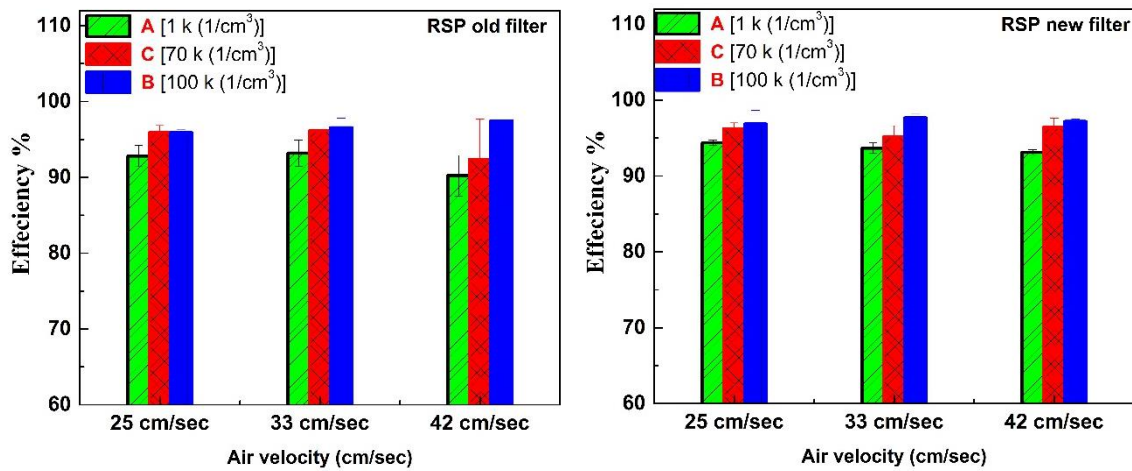


Рис. 4.16. Эффективность фильтров АФА-РСП старого и нового типа в зависимости от концентрации аэрозолей и скорости фильтрации.

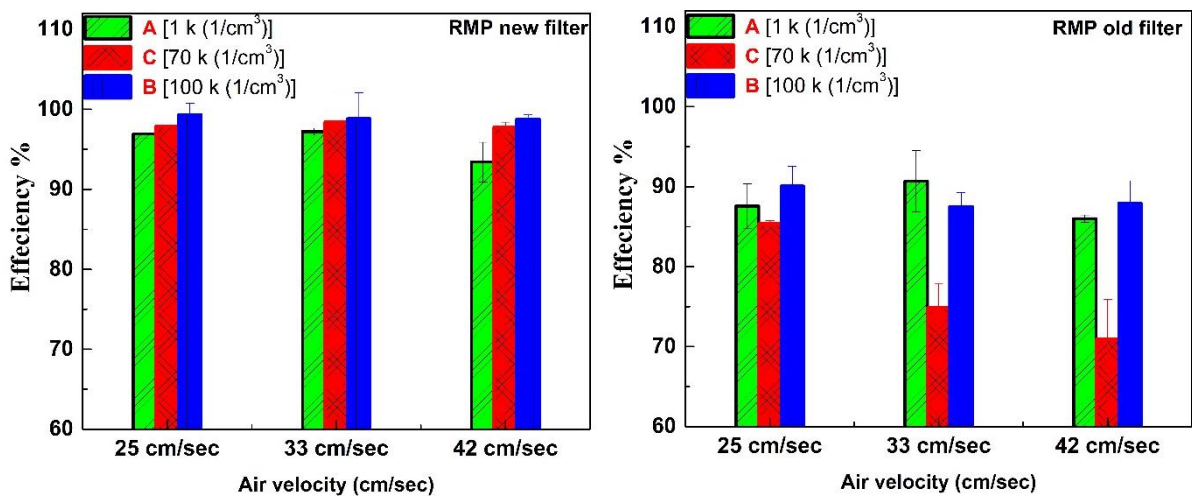


Рис. 4.17. Эффективность фильтров АФА-РМП старого и нового типа в зависимости от концентрации аэрозолей и скорости фильтрации

Для всех фильтров АФА-РСП и нового фильтра АФА-РМП эффективность практически не зависит от скорости фильтрации воздуха. Наблюдается небольшое повышение эффективности при увеличении концентрации аэрозольных частиц.

Для фильтра АФА-РМП старого типа наблюдается иная картина. Разница в эффективности между старым и новым фильтрами составляет не менее 10 % – новый фильтр более эффективен. При различной скорости фильтрации воздуха эффективность фильтра уменьшается с увеличением концентрации аэрозоля от точки А ( $NC = 10^3 \text{ см}^{-3}$ ) до точки С ( $NC = 7 \cdot 10^4 \text{ см}^{-3}$ ) и снова увеличивается в точке В ( $NC = 10^5 \text{ см}^{-3}$ ). Общее снижение эффективности фильтра можно объяснить полной нейтрализацией статического заряда на волокнах старых фильтров и, следовательно, снижением эффективности фильтра.

Нелинейный характер зависимости эффективности фильтров АФА-РМП старого типа может быть объяснен рядом факторов:

1. При низкой концентрации аэрозольных частиц (А) значительная (50–60 %) доля активности связана с аэрозолями с  $AMTD = 1 \text{ нм}$  (неприсоединенная фракция). Для таких аэрозолей эффективность улавливания аэрозольным фильтром высока в силу высокой диффузионной подвижности данных частиц.
2. Непосредственно после поступления аэрозолей в камеру (В) наблюдается рост не только частиц с диаметрами в диапазоне 0,2–0,5 мкм, но и крупнодисперсных частиц. В данном разделе и в разделе 4.1 было показано, что после поступления аэрозолей в бокс медианный поверхностный диаметр крупнодисперсных частиц может достигать ~ 4–6 мкм. При этом заметная доля активности ДПР радона будет связана с крупными частицами, которые имеют хорошую эффективность улавливания аэрозольными фильтрами. Дополнительный эффект может играть забивание фильтра крупнодисперсными аэрозольными частицами,

состоящими из смеси глицерина и этиленгликоля, имеющей при комнатной температуре низкую испаряемость.

3. При выдержке радонового бокса в течение одного часа (С) имеют место несколько эффектов. Во-первых, крупнодисперсные аэрозоли оседают на дно камеры под действием гравитационных сил. Во-вторых, концентрация частиц в диапазоне 0,2–0,5 мкм (наиболее проницаемый размер [81]) увеличивается за счет коагуляции УДЧ (рис. 4.13). В-третьих, наблюдается увеличение активности ДПР радона, ассоциированной с частицами моды Айткена с АМТД 10 и 40 нм (рис. 4.15), также обладающими повышенной проницаемостью через фильтр.

В результате при ослаблении эффекта электростатического улавливания наблюдается нелинейная зависимость эффективности улавливания фильтрами АФА-РМП старого типа ДПР радона от концентрации аэрозольных частиц.

Дополнительно следует отметить, что для точки С эффективность фильтра АФА-РМП старого типа явно снижается с 85 до 70 % при увеличении скорости фильтрации воздуха с 25 до 42 см/с (рис. 4.17). Данный эффект также может быть обусловлен относительным увеличением активности ДПР радона, ассоциированной с аэрозольными частицами, относящимися к моде Айткена. Частицы данного размера (10–40 нм) имеют слишком малую массу, чтобы эффективно работали такие механизмы улавливания частиц, как гравитационный или инерционный. При отсутствии электростатического механизма улавливания единственным механизмом улавливания частиц (кроме механизма зацепления, не зависящего от скорости фильтрации) будет диффузионный механизм. Для частиц моды Айткена диффузионный механизм улавливания будет заметно ниже, чем для неприсоединенной фракции. Согласно уравнению (1.11) эффективность диффузионного улавливания пропорциональна  $v^{-0.5}$ , где  $v$  – линейная скорость потока воздуха. Таким образом, снижение эффективности фильтров АФА-РМП старого типа находит свое объяснение.

Необходимо отметить, что рассмотренные выше зависимости во многом обусловлены спецификой исследуемого объекта – газозадушной смеси радона, его продуктов распада и взвешенных аэрозольных частиц, в которой происходит непрерывный динамический процесс образования радиоактивных частиц предельно малого размера (неприсоединенных продуктов распада) и их взаимодействие в более крупными нерадиоактивными частицами.

Для фильтра АФА-РСП нового типа самая высокая эффективность составляет 97,1 % при скорости воздуха 25 см/с и высокой концентрации аэрозоля  $10^5$  см<sup>-3</sup>. При той же концентрации аэрозоля эффективность фильтра уменьшается на 1 % с увеличением скорости воздуха до 42 см/с. Минимальное значение эффективности фильтра АФА-РСП нового типа составляет 93,1 % при скорости воздуха 42 см/с и концентрации аэрозоля  $10^3$  см<sup>-3</sup>. Эффект старения для фильтров АФА-РСП практически не наблюдается.

При высокой концентрации аэрозоля  $10^5$  см<sup>-3</sup> эффективность фильтра АФА-РМП нового типа снижается с 99,3 до 97,8 % при увеличении скорости воздуха с 25 до 42 см/с. Минимальное значение эффективности фильтра АФА-РМП нового типа, как и для фильтров АФА-РСП, составляет 93,4 % при скорости фильтрации воздуха 42 см/с и концентрации аэрозоля  $10^3$  см<sup>-3</sup>. В целом зависимости эффективности фильтров АФА-РСП и АФА-РМП нового типа от скорости фильтрации воздуха и концентрации аэрозольных частиц аналогичны (рис. 4.16, 4.17).

На рис. 4.18 представлены результаты измерения эффективности фильтра АФА-РМВ-20. Эффективность фильтра АФА-РМВ практически постоянна – 99,85 % при различной скорости фильтрации воздуха и при различной концентрации аэрозольных частиц. Эффективность фильтра АФА-РМВ лежит в диапазоне 99,83–99,87 % для диапазона скоростей воздуха 25–42 см/с и концентрации аэрозоля  $10^3$ – $10^5$  см<sup>-3</sup>.

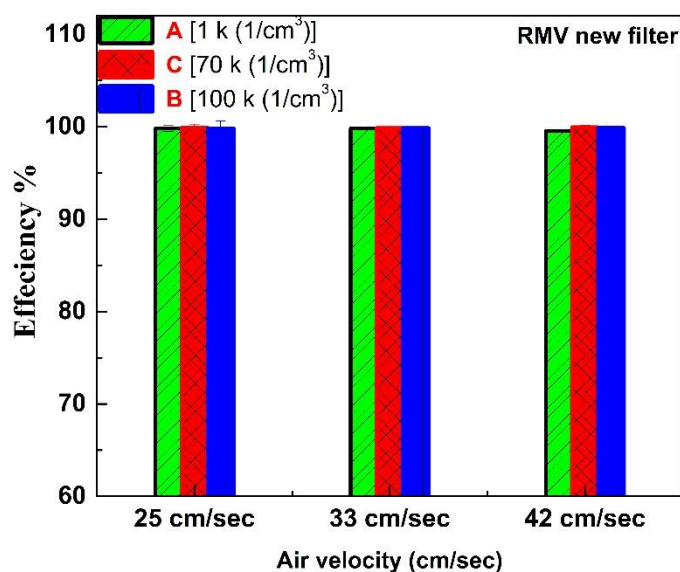


Рис. 4.18. Эффективность фильтров АФА-РМВ в зависимости от концентрации аэрозолей и скорости фильтрации.

В целом, для трех различных типов фильтров АФА различие в эффективности улавливания можно объяснить различиями в их структуре и наличием такого механизма улавливания, как электростатическое осаждение аэрозолей на волокнах фильтра для типа АФА-РМП-20. Необходимо отметить существенное влияние эффекта старения для фильтров данного типа. Наиболее эффективным фильтром при различных физических условиях является фильтр АФА-РМВ.

#### 4.4. Изучение проницаемости радиоактивных аэрозолей через фильтры Петрянова

Представленные в предыдущем параграфе результаты показывают, что одним из ключевых параметров, характеризующих аэрозольные аналитические фильтры, является функция пропускания фильтра в зависимости от размеров частиц. Традиционно такие характеристики определяют, используя нерадиоактивные монодисперсные аэрозоли [1, 3, 11]. Данный метод, несмотря на свою привлекательность, обладает и рядом



недостатков: необходимость создания специальных устройств, генерирующих монодисперсные аэрозоли, технические сложности получения аэрозолей с  $d < 20$  нм, невозможность получения функции пропускания в течение одного эксперимента и др.

В настоящей работе функция пропускания аналитических аэрозольных фильтров оценивалась путем сопоставления размерного распределения радиоактивных аэрозолей до и после прохождения через фильтр [127]. Для исследований были выбраны фильтры АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 старого и нового типа. Фильтры АФА-РМВ-20 в силу их высокой эффективности были исключены из рассмотрения. В результате низкой проницаемости фильтров АФА-РМВ-20 технически не было возможно измерить размерное распределение активности аэрозолей, прошедших сквозь фильтр.

Технические условия проведения экспериментов соответствовали условиям, описанным в предыдущих параграфах. Так же, как и в предыдущих экспериментах, проводился контроль концентрации и размерного распределения аэрозольных частиц в радоновом боксе при помощи дифференциального аэрозольного спектрометра.

Параметры размерного распределения по концентрации и удельной поверхности приведены в таблице 4.3. Общая численная концентрация варьировалась от  $500 \text{ см}^{-3}$  в чистом радоновом боксе до  $40000 \text{ см}^{-3}$  через 1 ч после поступления, а затем постепенно снижалась до начальных уровней.

Размерное распределение частиц по активности измерялось одновременно с распределением аэрозоля по размеру и концентрации. Промежуток времени между поступлением аэрозоля и отбором проб для измерения активности частиц составлял 1 час. Экспериментально было установлено, что этого времени достаточно для получения стабильной концентрации частиц, не изменяющей своих характеристик за время отбора проб.

Таблица 4.3

Размерное распределение аэрозольных частиц по концентрации и удельной поверхности при проведении эксперимента

Пара-метр	До поступления аэрозолей		Время после поступления аэрозолей					
			1 ч		2 ч		3 ч	
	Мелко дисп.	Крупно дисп.	Мелко дисп.	Крупно дисп.	Мелко дисп.	Крупно дисп.	Мелко дисп.	Крупно дисп.
СМД, нм	119	–	105	–	118	–	111	–
СГО	1,4	–	1,5	–	1,4	–	1,4	–
ПМД, нм	162	–	129	3500	136	1000	129	–
СГО	1,5	–	1,3	1,9	1,3	2,3	1,3	–

Измерения проводились по следующей схеме:

1. Отбор пробы на устройство, используемое для анализа размерного распределения радиоактивных аэрозолей (диффузионная батарея или каскадный импактор АИП-2). Длительность отбора пробы составляла 5 мин, линейная скорость фильтрации 25 см/с.
2. Установка исследуемого аэрозольного фильтра перед диффузионной батареей или каскадным импактором и повторный отбор пробы. Интервал между окончанием первого пробоотбора и началом второго пробоотбора не превышал 1–2 мин.
3. Выдержка отобранных проб после окончания пробоотбора в течение не менее 30 мин в соответствии с требованиями по проведению измерений методом Кузнецца.
4. Измерение активности  $\alpha$ -излучающих радионуклидов на улавливающих элементах диффузионной батареи или каскадного импактора. Для повышения точности полученных результатов, учитывая относительно короткий период полураспада ДПР радона, измерение начинается с элементов, имеющих минимальную активность. Длительность измерения

одного элемента составляла 2 мин, что обеспечивало случайную ошибку измерения активности менее 10 % даже для низкоактивных образцов.

5. Восстановление размерного распределения ЭРОА радона в открытой атмосфере и за аэрозольным фильтром.

Распределение аэрозоля по размерам в диапазоне, проводимом с помощью диффузионной батареи, показано на рис. 4.19 до и после прохождения через фильтр АФА-РСП, соответственно. На рис. 4.19А представлено размерное распределение ЭРОА радона для чистого бокса без дополнительного источника аэрозоля. В атмосфере перед фильтром основная мода соответствует  $AMTD = 1$  нм с активностью около 70 % от общей активности. Вторая мода имеет размер  $\sim 20$  нм с активностью не более 10 %. За фильтром АФА-РСП, мода 1 нм практически полностью удаляется (ослабление  $\sim 1000$  раз), а мода 20 нм задерживается фильтром на 92–95 %. После поступления аэрозолей (рис. 4.19В) фракция с размером аэрозолей  $\sim 1$  нм, как и следовало ожидать, отсутствует. Основная регистрируемая при помощи диффузионной батареи мода составляет 20 нм. При этом активность данной моды не превышает 20 % от общей активности. Оставшаяся доля активности связана с размером аэрозольной фракции более 100 нм, которая находится вне рабочего диапазона диффузионной батареи, ее размерное распределение в деталях не измерялась. При высокой концентрации аэрозольных частиц фильтр АФА-РСП улавливает 92 % активности моды с  $AMTD = 20$  нм. Данный результат хорошо согласуется с данными, полученными для данного фильтра при низкой концентрации аэрозольных частиц (рис. 4.19А).

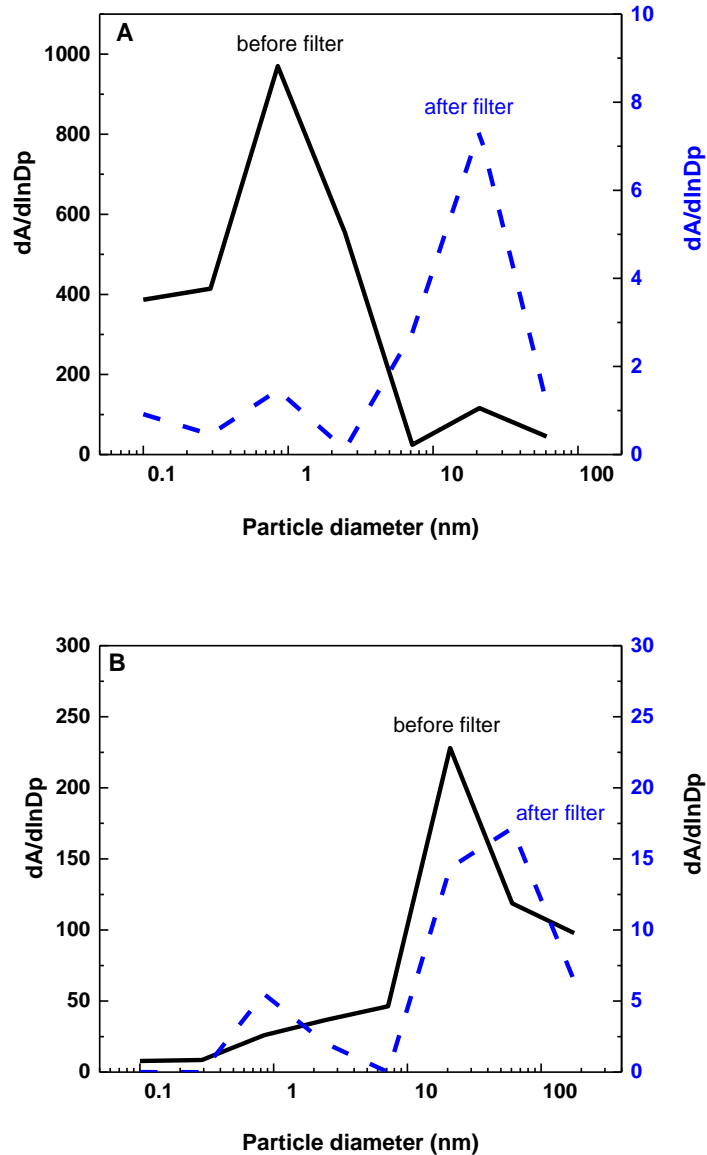


Рис. 4.19. Распределение активности по размеру до и после прохождения фильтра АФА-РСП, измеренное с использованием диффузионной батареи (А – чистый радоновый бокс; В – при высокой концентрации аэрозоля). Левая ось ординат соответствует измерениям перед фильтром, правая ось ординат – измерениям после фильтра

Для каскадного импактора, как упоминалось ранее, диапазон регистрируемых размеров аэрозольных частиц составляет от 0,8 до 23,3 мкм. Следовательно, для чистого радонового бокса (~ 60–70 % неприсоединенных продуктов распада радона с АМТД на 1 нм) импактор не регистрирует активность аэрозолей, и вся активность оседает на финишном фильтре.

Поэтому были рассмотрены только измерения каскадным импактором АИП-2 при высокой концентрации аэрозоля. Параметры распределения радиоактивных аэрозолей (АМАД и СГО) в исходной атмосфере и атмосфере после прохождения фильтра АФА-РСП представлены в табл. 4.4. Можно отметить некоторое снижение АМАД ДПР радона после прохождения фильтра, что может свидетельствовать о более высокой проницаемости частиц моды аккумуляции по сравнению с крупнодисперсными аэрозолями. В рассматриваемом диапазоне размеров фильтр АФА-РСП улавливает около 95 % активности.

Таблица 4.4

Размерное распределение радиоактивных аэрозолей в открытой атмосфере и после прохождения фильтра АФА-РСП, измеренное при помощи каскадного импактора.

Параметр	Открытая атмосфера	После фильтра
АМАД (мкм)	1,25	1,06
СГО	1,6	1,5

Результаты аналогичных измерений для фильтров АФА-РМП старого и нового типа представлены на рис. 4.20 и 4.21. Как и фильтр АФА-РСП, фильтр АФА-РМП хорошо задерживает моду с АМТД = 1 нм. Однако для фильтра АФА-РМП мода с АМТД = 20 нм обладают большей проникающей способностью, чем для фильтров АФА-РСП. При высокой концентрации аэрозолей до 50 % частиц размером 20 нм проходят через фильтр АФА-РМП нового типа, для фильтров АФА-РМП старого типа проницаемость еще увеличивается, что может быть следствием нейтрализации электростатического заряда на волокнах фильтров во время их длительного хранения.

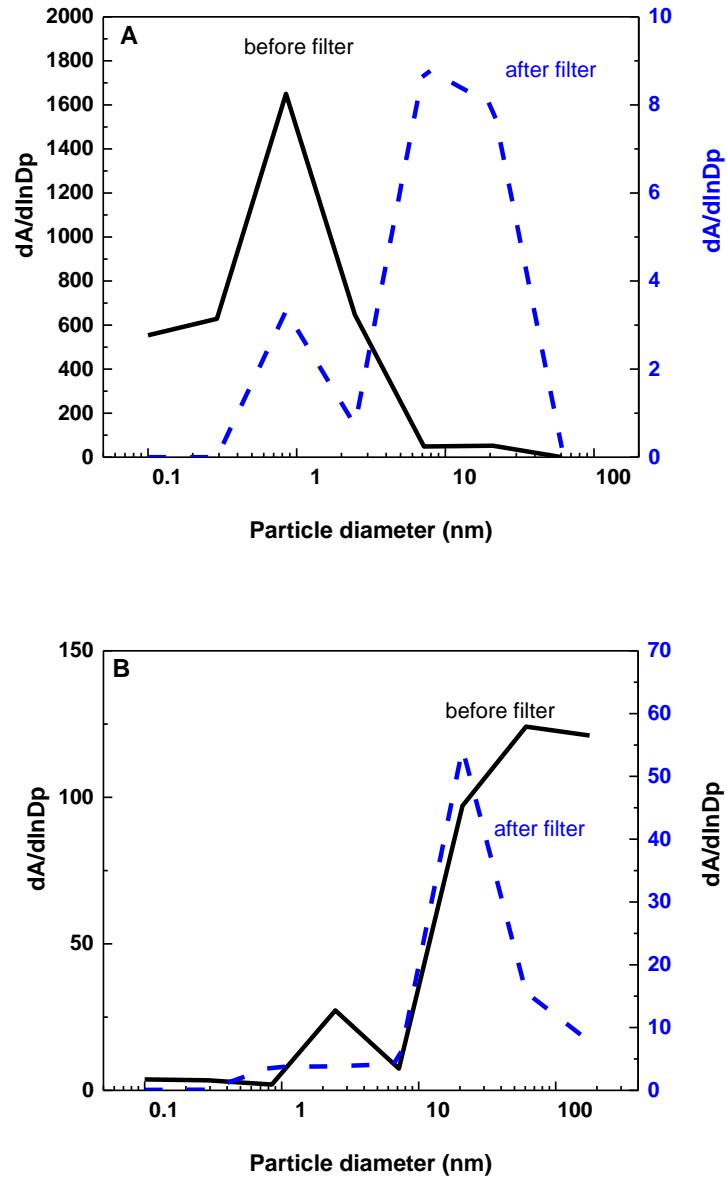


Рис. 4.20. Распределение активности по размеру до и после прохождения фильтра АФА-РМП нового типа, измеренное с использованием диффузионной батареи (А – чистый радоновый бокс; В – при высокой концентрации аэрозоля). Левая ось ординат соответствует измерениям перед фильтром, правая ось ординат – измерениям после фильтра.

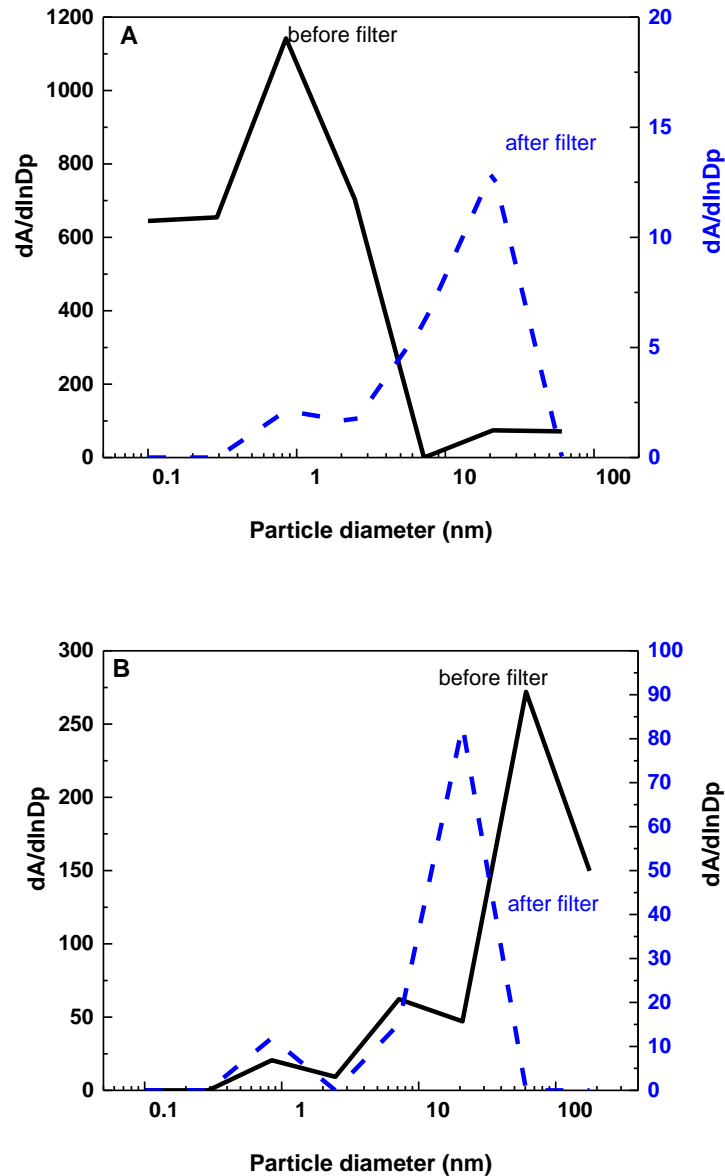


Рис. 4.21. Распределение активности по размеру до и после прохождения фильтра АФА-РМП старого типа, измеренное с использованием диффузионной батареи (А – чистый радоновый бокс; В – при высокой концентрации аэрозоля). Левая ось ординат соответствует измерениям перед фильтром, правая ось ординат – измерениям после фильтра.

Параметры размерного распределения по результатам измерений, выполненных при помощи каскадного импактора АИП-2 для фильтров АФА-РМП нового и старого типа, представлены в табл. 4.5. При высокой концентрации аэрозоля основной размер составляет около 1 мкм. Для фильтра

нового типа доля проникновения составляет не более 1 %, а для фильтров АФА-РМП старого типа около 20 % частиц размером 1 мкм проникают сквозь фильтр. Эти результаты подтверждают тот факт, что старая версия фильтра АФА-РМП имеет низкую эффективность по сравнению с новым фильтром. Как и для фильтров АФА-РСП, после прохождения через фильтр наблюдается незначительное уменьшение АМАД радиоактивных аэрозолей, однако для фильтров старого типа такое уменьшение не является статистически значимым.

Таблица 4.5

Размерное распределение радиоактивных аэрозолей в открытой атмосфере и после прохождения фильтров АФА-РМП, измеренное при помощи каскадного импактора.

Параметр	Фильтр нового типа		Фильтр старого типа	
	Открытая атмосфера	После прохождения фильтра	Открытая атмосфера	После прохождения фильтра
АМАД (мкм)	1,15	0,92	1,00	0,96
СГО	1,4	1,5	1,4	1,4

По изучению проницаемости фильтров Петрянова для радиоактивных аэрозолей можно сделать следующие выводы:

1. Использование продуктов распада радона со специфичным для этих аэрозолей мультимодальным распределением позволяет изучать проницаемость аэрозольных фильтров в области АМТД 1–20 нм, практически недоступной для других методов.
2. Фильтры АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 имеют высокую эффективность для ультрадисперсных мод неприсоединенных ДПР радона с АМТД ~1 нм и частиц, которые имеют размер более 200 нм.
3. Частицы, относящиеся к моде Айткена (АМТД ~20 нм), обладают существенно более высокой проницаемостью, чем неприсоединенная



фракция, что необходимо учитывать при измерении аэрозолей, содержащих ДПР радона.

4. При высокой концентрации аэрозольных частиц фильтр АФА-РСП-20 более эффективен, чем фильтр АФА-РМП-20 для частиц с АМТД  $\sim 20$  нм.
5. Для частиц с АМАД  $\sim 1$  мкм через фильтр АФА-РСП-20 может проникать 5 % активности, через фильтр АФА-РМП-20 нового типа 1–2 %, а через фильтр АФА-РМП-20 старого – до 20%.
6. Результаты исследований подтверждают, что старая версия фильтра АФА-РМП-20 имеет низкую эффективность по сравнению с новой из-за электростатического разряда в процессе длительного хранения.

#### **4.5. Изучение проницаемости нерадиоактивных аэрозолей через фильтры Петрянова**

Дополнительно к исследованию проницаемости радиоактивных аэрозолей сквозь фильтры АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 был поставлен эксперимент по определению проницаемости данных фильтров для широкого спектра аэрозольных частиц, присутствующих в окружающей атмосфере. С помощью диффузионного аэрозольного спектрометра в воздухе помещения было измерено числовое размерное распределение аэрозолей в окружающем воздухе до и после аэрозольных фильтров (рис. 4.22) и оценена проницаемость для двух типов аэрозольных фильтров АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 нового типа. Проницаемость была оценена как отношение концентраций аэрозольных частиц в исходной атмосфере и после прохождения фильтра. В процессе измерений не были использованы никакие дополнительные источники аэрозолей.

На рисунке 4.23 представлено распределение по размерам частиц аэрозоля до и после прохождения фильтров АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20. Счетный медианный диаметр окружающего аэрозоля в помещении составлял менее 100 нм. Функция проницаемости каждого типа фильтра представлена на

рис. 4.24. Проницаемость частиц с размером  $d \sim 100$  нм для фильтра АФА-РМП-20 составляет 15 % по сравнению с проницаемостью 22 % для фильтра АФА-РСП-20. Результаты исследования проницаемости аэрозольных фильтров АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 нового типа для нерадиоактивных частиц хорошо согласуются с результатами изучения проницаемости радиоактивных аэрозолей с АМГД = 20 нм для низкой концентрации аэрозольных частиц, представленными в параграфе 4.4. Следует отметить заметный разброс проницаемости в области наиболее проникающих частиц даже для фильтров из одной партии.

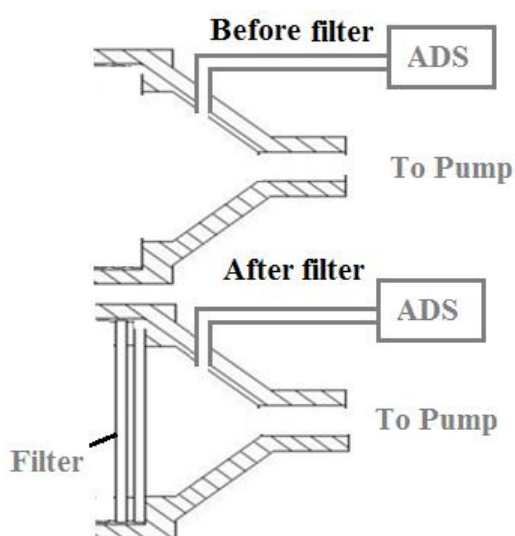


Рис. 4.22. Схема эксперимента для изучения функции пропускания нерадиоактивных аэрозольных частиц аналитическими фильтрами АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20

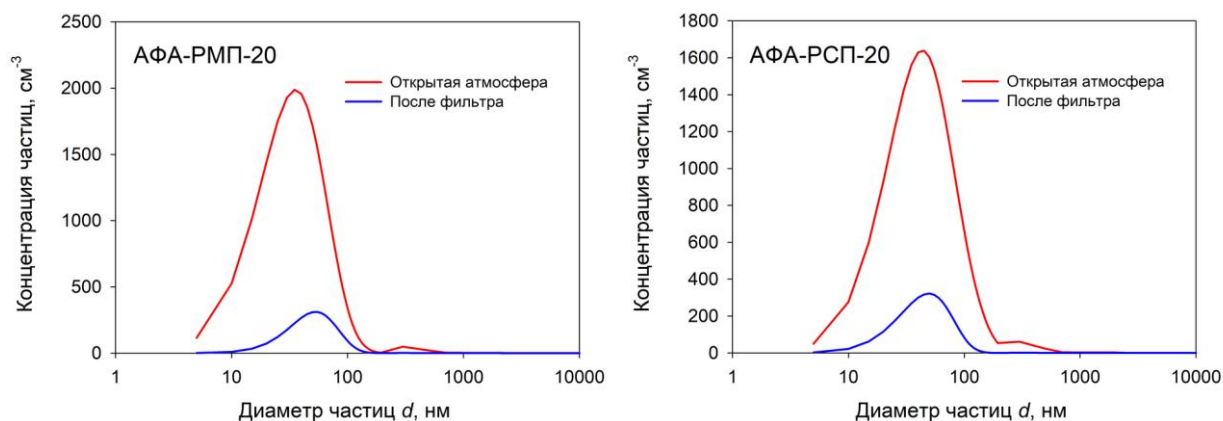


Рис. 4.23. Численное распределение естественных нерадиоактивных аэрозолей в окружающей среде и после прохождения аналитических аэрозольных фильтров АФА-РМП-20 и АФА-РСП-20 нового типа

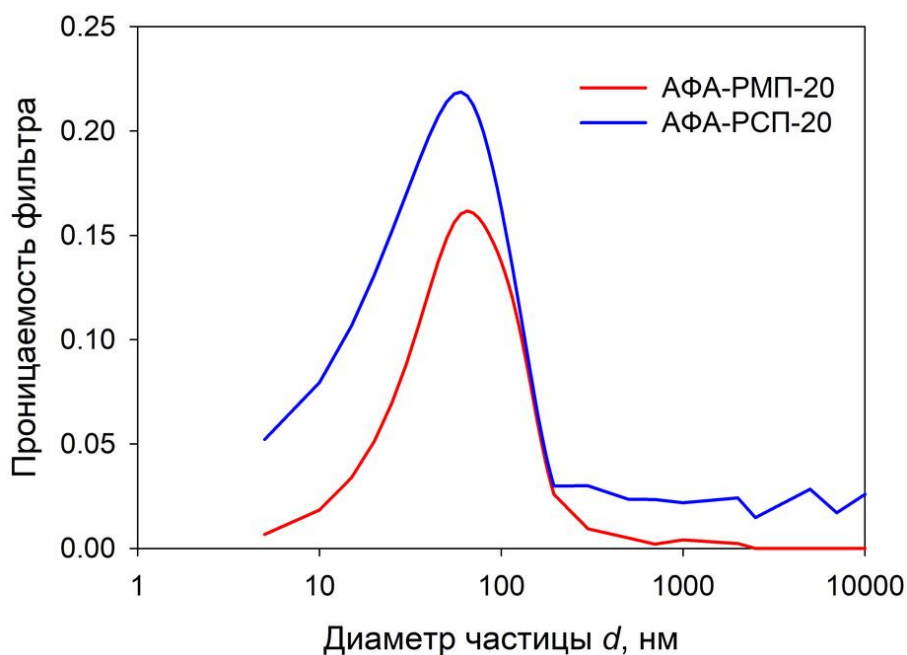


Рис. 4.24. Функция проницаемости нерадиоактивных аэрозолей для фильтров АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 нового типа

В дальнейшем представленная на рис. 4.24 функция проницаемости стандартных аэрозольных фильтров была использована для расчета функции отклика пакета из трех аналитических фильтров для определения размерного распределения аэрозолей в диапазоне 0,1–1,0 мкм (глава 5).

По итогам исследований, представленных в главе 4, можно сделать следующие выводы.

1. Сдвиг равновесия между ОА ДПР радона следует рассматривать в зависимости от концентрации аэрозолей и их распределения по размерам. Для интерпретации результатов радиометрических измерений ОА ДПР радона необходимо учитывать различия в сдвиге равновесия между продуктами распада отдельно для неприсоединенных продуктов распада радона и для продуктов распада, ассоциированных с аэрозольными частицами.
2. Использование продуктов распада радона со специфичным для этих аэрозолей мультимодальным распределением позволяет изучать проницаемость аэрозольных фильтров в области АМТД 1–20 нм, практически недоступной для других методов.
3. Фильтры АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 имеют высокую эффективность для ультрадисперсных мод неприсоединенной фракции ДПР радона с АМТД ~1 нм и проникающих частиц, которые имеют размер более 200 нм.
4. Частицы, относящиеся к моде Айткена (АМТД ~20 нм) и начальному участку моды аккумуляции обладают существенно более высокой проницаемостью, чем неприсоединенная фракция, что необходимо учитывать при измерении аэрозолей, содержащих ДПР радона.

Полученные данные позволяют сформулировать второе защищаемое положение:

***Эффективность фильтров Петрянова для аэрозолей ДПР радона обусловлена процессами образования неприсоединенных продуктов распада и их взаимодействием с аэрозолями, относящимся к модам Айткена и аккумуляции, имеющим различную проницаемость через фильтр.***

## ГЛАВА 5. УНИВЕРСАЛЬНОЕ УСТРОЙСТВО ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ РАЗМЕРНОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ

Как было показано в главе 1, а также продемонстрировано в главе 4, диапазон размеров радиоактивных аэрозолей может перекрывать более чем четыре порядка величины, от 0,5 нм до 20 мкм. К сожалению, при решении практических задач по определению размерного распределения радиоактивных аэрозолей имеется ряд моментов, осложняющих данную процедуру [128].

Прежде всего, все рассмотренные в главе 1 средства измерений имеют ограниченный диапазон измерений. Практически реализуемый диапазон работы диффузионной батареи составляет от 0,1 до 100–200 нм [97, 107]. Каскадные импакторы уверенно позволяют получить размерное распределение радиоактивных аэрозолей в области 0,5–20 мкм, однако, учитывая, что диаметр 50 %-ой отсечки для последнего каскада обычно составляет 0,3–0,8 мкм, то измерения в области размеров 0,2–1,0 мкм при помощи каскадных импакторов затруднены.

Диапазон определяемых с помощью метода многослойных фильтров (ММФ) размеров частиц зависит от скорости фильтрации и выбранной композиции пакета фильтров. Все ограничения вытекают из диапазона проявления инерционного механизма улавливания частиц. Проведение дисперсного анализа с помощью ММФ невозможно, если практически все частицы будут задержаны на первом слое пакета. Поэтому чем частицы крупнее, тем менее эффективными должны быть первый и второй слои. Для этого можно выбрать либо более тонкие фильтры с тем же диаметром волокон, либо фильтры, состоящие из более толстых волокон [81].

При скорости отбора проб около 1,5 м/с и аэродинамическом сопротивлении первого слоя 1,2 Па/см/с возможен анализ размеров частиц в диапазоне 0,1–2 мкм. Снизив скорость до 0,5 м/с и уменьшив сопротивление первого слоя до 0,8–1 Па/см/с, можно определить размер частиц с медианным диаметром до 7–8 мкм [81, 129]. Диапазон размеров, представляющий интерес

для дозиметрии внутреннего облучения, составляет 0,001–20 мкм [115, 116]. Метод многослойных фильтров, реализованный на основе материалов из волокон диаметром около 7 мкм, позволяет определить  $d_0$  в размерном диапазоне 0,04–7 мкм. На краях размерного диапазона погрешность определения параметров логнормального распределения выше, чем в его середине, и наилучшие результаты получаются в диапазоне 0,1–5 мкм. Метод многослойных фильтров уступает большинству моделей импакторов в области микронных размеров, особенно при  $d_0 > 5$  мкм [81].

В ММФ плотность распределения априорно задается логнормальным распределением, и восстанавливаются его параметры. С помощью импактора по полученной гистограмме функция распределения восстанавливается более точно. Использование ММФ для анализа бимодальных распределений неэффективно, однако можно заменить последний каскад импактора пакетом фильтров [81].

При использовании каскадных импакторов и метода многослойных фильтров необходимо принимать во внимание, что интерпретация результатов измерений может быть существенно искажена присутствием в атмосфере радиоактивных аэрозолей с размерами менее 20 нм. О наличии таких аэрозолей оператор может не знать. Радиоактивные аэрозоли сверхмалых размеров за счет высокого коэффициента диффузии имеют высокую вероятность осаждения на первых каскадах каскадного импактора или первом фильтре многослойного пакета. Обычно на этих улавливающих элементах оседают крупнодисперсные аэрозоли с диаметрами 5–20 мкм. Оседание ультрадисперсных аэрозолей, в первую очередь неприсоединенной фракции ДПР радона или торона, может создать ошибочное впечатление о наличии в атмосфере крупнодисперсных радиоактивных аэрозолей [113, 114]. Наличие неприсоединенной фракции с АМТД = 1 нм было продемонстрировано не только в помещениях с высокими уровнями радона или торона, но и в реакторном зале исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М, где

наблюдалось образование единичных радиоактивных атомов  $^{138}\text{Cs}$  и  $^{88}\text{Rb}$  при распаде радиоактивных инертных газов  $^{138}\text{Xe}$  и  $^{88}\text{Kr}$  [71].

Таким образом, становится очевидным разработка устройства, позволяющего одномоментно определять размерное распределение радиоактивных аэрозолей во всем диапазоне респираторной фракции от 0,5 нм до 20 мкм. Подобное устройство должно сочетать в себе лучшие свойства описанных выше устройств.

В этой работе представлена система отбора проб, состоящая из 12-ступенчатой диффузионной батареи, пятиступенчатого каскадного импактора и набора из трех аналитических аэрозольных фильтров с установленными функциями проницаемости для измерения распределения радиоактивного аэрозоля по размерам продуктов распада радона. Частицы, осажденные на диффузионной батарее во время отбора, находятся в диапазоне 1–50 нм, в то время как для каскадного импактора преобладает метод инерционного осаждения в диапазоне 0,8–20 мкм. Наконец, аэрозоли могут быть собраны на аналитических фильтрах в зависимости от соответствующего размера частиц (в диапазоне 0,1–0,8 мкм). Наличие диффузионной батареи перед каскадным импактором предотвращает диффузионное осаждение ультрадисперсных аэрозолей на первых каскадах импактора, что приводит к ложной информации о наличии крупнодисперсных аэрозолей в атмосфере [113, 114]. В качестве радиометрических аналитических фильтров были использованы стандартные фильтры АФА-РСП-20. Функция пропускания фильтров АФА-РСП-20 приведена в главе 4.

На рис. 5.1 показана разработанная система для изучения распределения радиоактивных аэрозолей по размерам в диапазоне от 1 нм до 20 мкм со средней объемной скоростью расхода воздуха 30 л/мин, соответствующей линейной скорости потока в диффузионной батарее и финишных фильтрах 0,25 м/с. Эксперименты проводились как при низкой (менее  $2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-3}$ ), так и при высокой концентрации аэрозоля (более  $2 \cdot 10^4 \text{ см}^{-3}$ ) с использованием дополнительного источника аэрозоля. В ходе эксперимента атмосфера,

содержащая радиоактивный аэрозоль, последовательно проходит через улавливающие элементы, расположенные внутри бокса с радоном, проходит через газовый счетчик для контроля объема перекачиваемого воздуха и, наконец, возвращается в бокс. Это обеспечивает замкнутый цикл и отсутствие утечек радона за пределы экспериментальной установки.

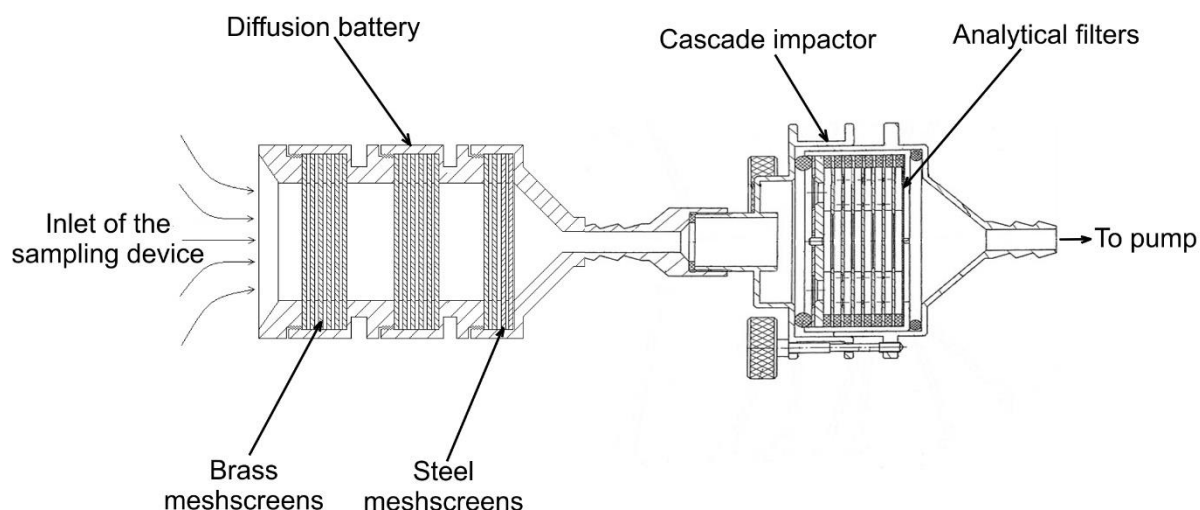


Рис. 5.1. Разработанная универсальная система для измерения размерного распределения радиоактивных аэрозолей в диапазоне от 0,5 нм до 20 мкм

При выборе в качестве материала для многослойных аналитических фильтров стандартных однотипных фильтров АФА-РСР-20 были приняты во внимание следующие факторы.

1. Доступность данного материала. Описанные в работе [81] аэрозольные фильтры с переменным аэродинамическим сопротивлением являются индивидуально изготовленной или мелкосерийной продукцией, не всегда доступной обычному потребителю.
2. Необходимость проведения измерений при низкой линейной скорости фильтрации воздуха. В стандартном ММФ используются достаточно высокие линейные скорости фильтрации воздуха 1,0–2,5 м/с. Это сделано для возможности измерения дисперсности радиоактивных частиц в широком диапазоне размеров. Подобная линейная скорость не приемлема



для эффективного использования диффузионной батареи, для которой оптимальная скорость фильтрации составляет всего 0,25 м/с.

3. Ограниченный диапазон размеров аэрозольных частиц, попадающих на многослойный фильтр (0,05–1 мкм), поскольку как ультрадисперсные, так и крупнодисперсные частицы будут отфильтрованы диффузионной батареей и каскадным импактором. В указанной области размеров проницаемость фильтров АФА-РСП-20 имеет относительно высокую проницаемость и выраженную нелинейность (рис. 4.16). Это позволяет разработать алгоритм определения размерного распределения радиоактивных аэрозолей, осевших на фильтре в предположении, что оно подчиняется логнормальному распределению.

Приведенные выше соображения не препятствуют использованию в качестве финишных фильтров пакетов, состоящих из одинаковых или различных типов фильтрующих материалов. Единственным требованием остается необходимость наличия информации о функции пропускания каждого фильтра.

Время отбора радиоактивных аэрозолей составило 5 мин. Альфа-активность на элементах диффузионной батареи, каскадных ударных элементах и аналитических фильтрах измерялась сцинтилляционным альфа-радиометром БДПА-01 после 30-минутного интервала после завершения отбора проб радиоактивных аэрозолей. Время измерения одного сетчатого экрана, коллекторной пластины каскадного импактора или фильтра составляло 2 мин. Эквивалентная равновесная объемная активность радона в момент завершения отбора пробы была рассчитана с использованием модифицированного метода Кузнецова [16, 17, 120].

Для функции проницаемости фильтра, представленной на рис. 4.23, были рассчитаны отношения активностей на фильтрах  $A_{\Phi 1}/A_{\Phi 2}$  и  $A_{\Phi 2}/A_{\Phi 3}$  для различных параметров логнормального распределения активности аэрозоля. Соответствие расчетного распределения реальному оценивалось по минимизации суммы квадратов отклонений реального измерения активностей

от расчетного. В качестве распределения, наиболее соответствующего реальному распределению, принималось расчетное распределение, имеющее минимальное значение суммы квадратов отклонений измеренных и расчетных значений отношений.

Работоспособность разработанной системы отбора проб была проверена при низких и высоких концентрациях аэрозоля в серии экспериментов. Было принято, что низкая концентрация аэрозоля соответствует концентрации аэрозольных частиц менее  $1\,000\text{ см}^{-3}$ . Повышенной концентрацией аэрозоля считалась концентрация выше  $2 \cdot 10^3\text{ см}^{-3}$ .

Результаты эксперимента показывают, что при низкой концентрации аэрозоля почти вся неприсоединенная фракция осаждается на первых экранах диффузионной батареи. Незначительная часть активности задерживается на каскадном импакторе. Остальная активность адсорбируется на трех фильтрах АФА-РСП. Основная активность наблюдается на первом фильтре как при низких, так и при высоких концентрациях аэрозоля. На следующих двух фильтрах обнаруживается не более 5 % активности по сравнению с первым фильтром.

При низкой концентрации аэрозоля ( $NC = 460\text{ см}^{-3}$ ) почти 70 % активности оседало на диффузионной батарее. На фильтрах отложилось около 27 %. Доля частиц, осажженных на коллекторных пластинах каскадного импактора, составляет не более 2 % от общей активности, поскольку диапазон улавливания каскадного импактора (0,8–20 мкм) выходит за пределы диапазона размеров аэрозолей в боксе (рис. 5.2).

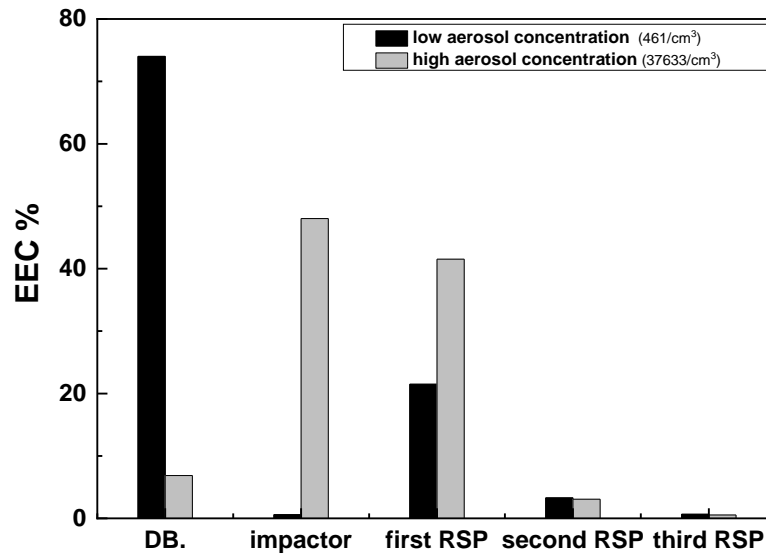


Рис. 5.2. Процентное соотношение ЭРОА радона, рассчитанное по результатам измерения активности на различных улавливающих элементах системы

Распределение активности по размерам при низкой концентрации аэрозоля для всего диапазона размеров от 0,5 нм до 20 мкм показано на рис. 5.3. Основной модой является неприсоединенная фракция около 1 нм. Фильтрующий пакет АФА-РСП демонстрирует наличие моды 200–300 нм (СГ = 230 нм, СГО = 1,4) с общей активностью 25 %.

Для получения высокой концентрации аэрозольных частиц, в радоновый бокс, как и в предыдущих экспериментах вводили дополнительные аэрозоли. Для достижения равновесия равновесного состояния аэрозолей в боксе требовалось не менее 1 ч. В этом случае увеличивается процесс присоединения ДПР радона к аэрозольным частицам, и скорость присоединения достигала  $\bar{X} = 500 \text{ ч}^{-1}$  при концентрации аэрозоля, равной  $37600 \text{ см}^{-3}$ .

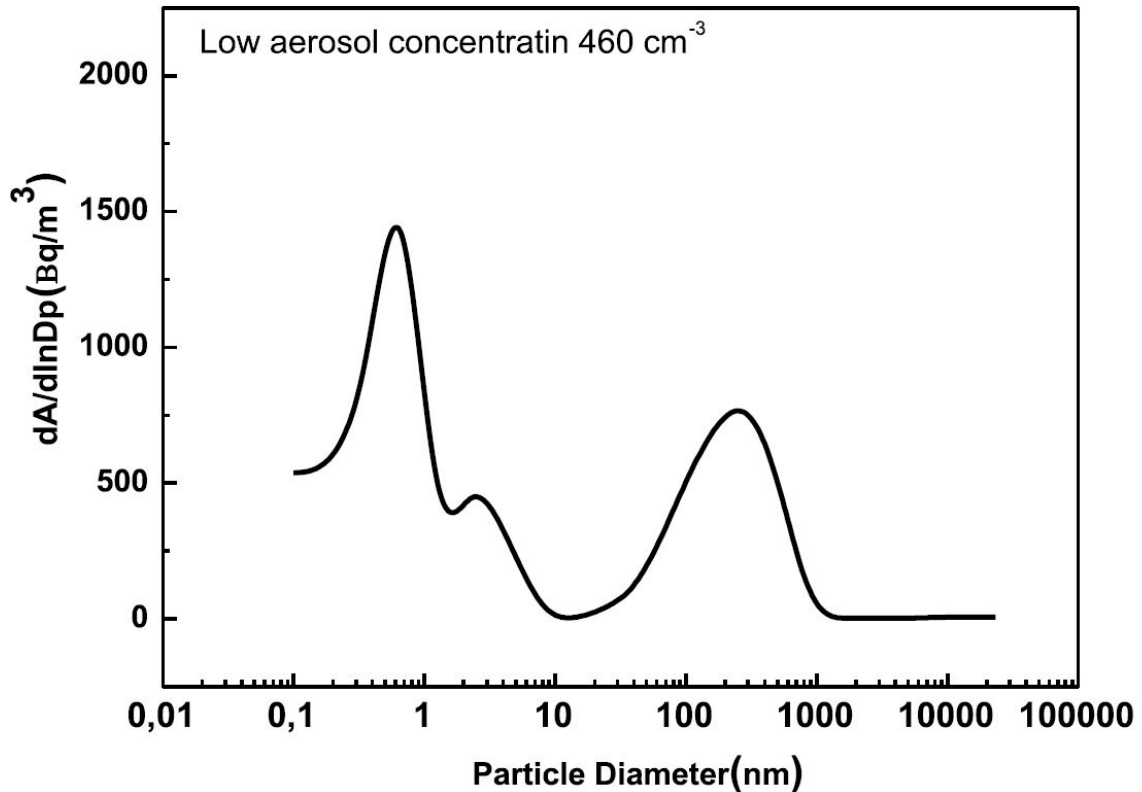


Рис. 5.3. Распределение активности по размерам при низкой концентрации аэрозоля для диапазона размеров от 0,5 нм до 20 мкм – диаметра 50 %-ой отсечки первого каскада импактора

При высокой концентрации аэрозольных частиц неприсоединенные продукты распада радона практически отсутствовали (активность на диффузионной батарее около 1 %). Наблюдаемая активность, измеренная на последних 2 коллекторных пластинах каскадного импактора AIR-2, составляла почти 50 % от общей активности: остальная часть активности откладывалась на фильтрах. Распределение активности по фильтрам соответствовало АМАД = 570–600 нм с СГО от 2,3 до 2,6. Активность, осевшая на импакторе соответствовала, АМАД = 1,2 мкм и СГО = 1,5.

На рис. 5.4 показано распределение активности по размерам при различных высоких концентрациях аэрозоля для диапазона размеров от 0,5 нм до 20 мкм. После поступления аэрозолей в радоновую камеру концентрация аэрозольных частиц со временем уменьшается. Только при изначально высокой концентрации аэрозолей каскадный импактор

регистрирует измеримую активность, поскольку поступившие в бокс аэрозоли с размером более 1 мкм имеют большую вероятность быстрого осаждения на стенках радоновой камеры. Основная мода распределения активности по размерам представлена по результатам измерения пакетом аналитических фильтров. Эта мода имеет АМАД около 200 нм с СГО = 1,5.

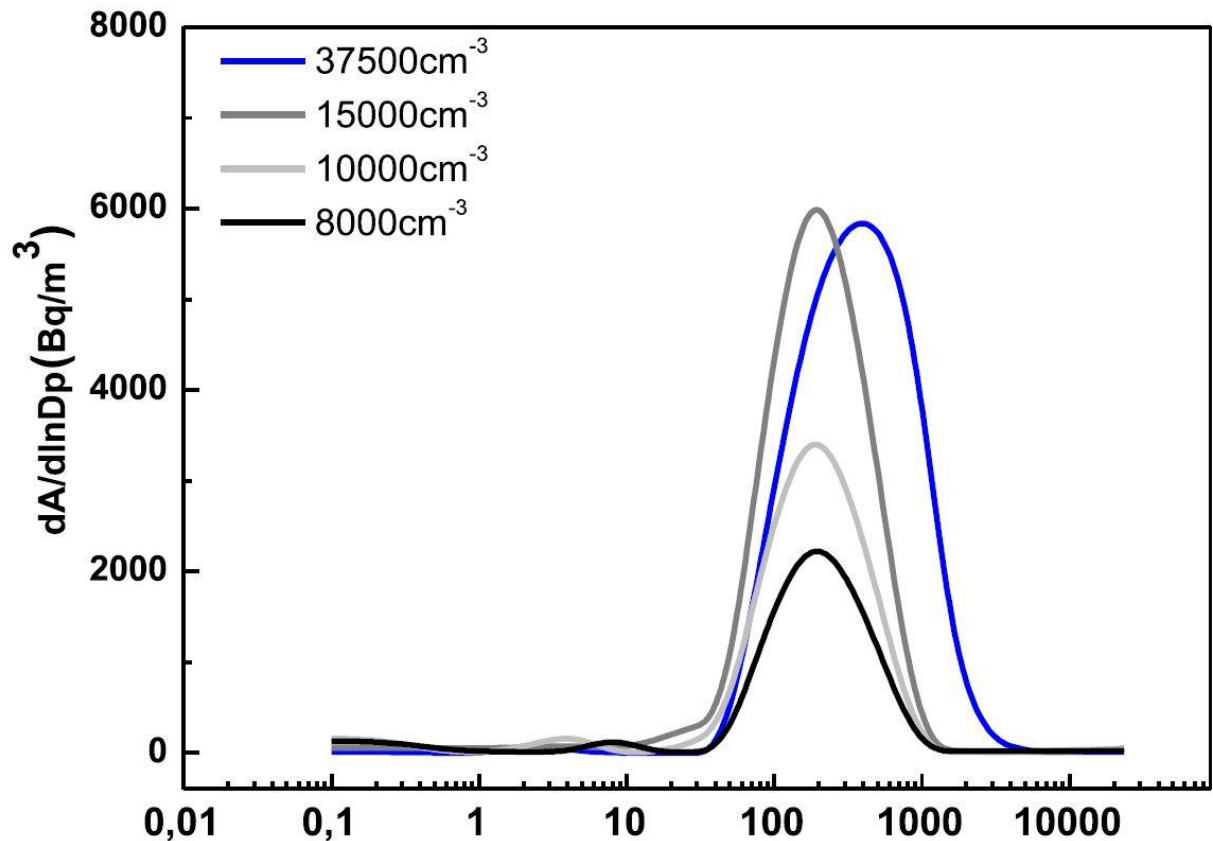


Рис. 5.4. Размерное распределение ЭРОА радона при различных повышенных концентрациях аэрозольных частиц

Со временем в радоновом боксе образуются свежие продукты распада радона, а поступившие аэрозольные частицы аэрозоль оседают на стенках камеры. При концентрации аэрозоля в диапазоне 2000–3000 см<sup>-3</sup> снова начинает появляться неприсоединенная фракция с АМТД около 1 нм, которая может быть измерена диффузионной батареей. При этом на каскадном импакторе не было зафиксировано практически никакой активности. Доля неприсоединенной фракции составляла от 0,3 до 0,4.

Активность, осевшая на фильтрах, имела АМАД около 200 нм с СГО = 1,4. Распределение активности по размерам при этих концентрациях аэрозоля для диапазона размеров от 0,5 нм до 20 мкм представлено на рис. 5.5.

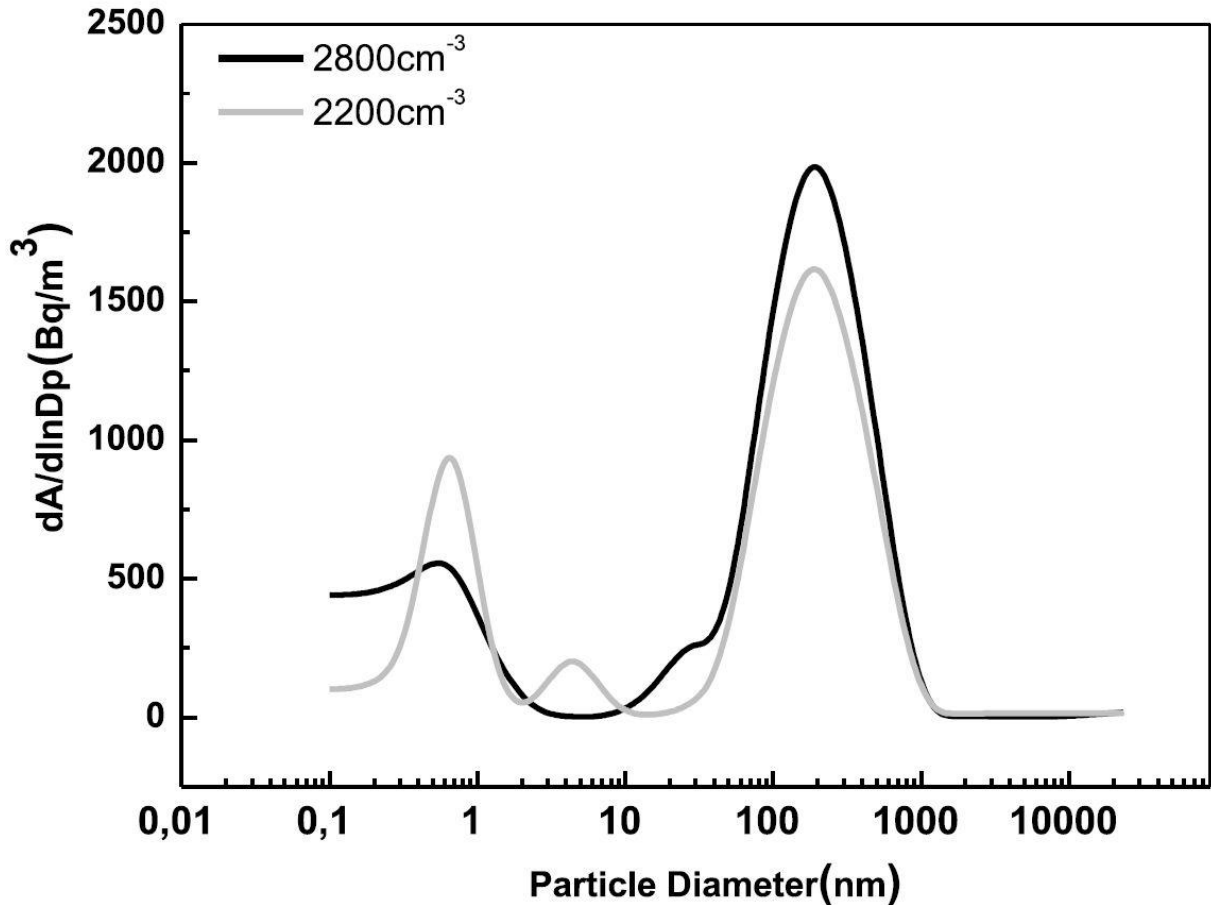


Рис. 5.5. Размерное распределение ЭРОА радона при снижении концентрации аэрозольных частиц

По результатам данной главы можно сделать следующие выводы.

1. Разработана комбинированная система для изучения распределения радиоактивных аэрозолей по размерам с широким диапазоном размеров частиц от 0,5 нм до 20 мкм.
2. Система испытана в радоновом боксе при концентрациях аэрозольных частиц от  $5 \cdot 10^2$  до  $4 \cdot 10^4$  см<sup>-3</sup>.
3. Исследована возможность использования аналитических фильтров при определении размерного распределения аэрозолей с осевшими на них

продуктами распада радона. Полученные распределения по размерам соответствуют ранее полученным надежным методам.

Представленные в данной главе результаты также позволяют сформулировать третье защищаемое положение.

*Комбинированная система, состоящая из последовательно соединенных диффузионной батареи, каскадного импактора и многослойного пакета фильтров, позволяет определить размерное распределение активности в диапазоне от 0,5 нм до 20 мкм при единичном отборе проб и отсутствии предварительной информации об ожидаемой дисперсности аэрозолей.*

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Использование бытовых источников аэрозолей (термическая обработка пищи, курение, свечи и др.) приводит к увеличению счетной концентрации аэрозольных частиц более, чем на порядок преимущественно за счет генерирования ультрадисперсных аэрозолей с  $d < 200$  нм (СМД 64–92 нм, СГО 1,45–1,84). В распределении по массе доминируют частицы с  $d$  от 2 до 10 мкм при максимуме распределения в области 2–5 мкм. Данные частицы, преимущественно откладывающиеся в верхних дыхательных путях, вносят основной вклад в токсическое действие аэрозолей.
2. Для аэрозольных частиц от бытовых источников присоединение ДПР радона к аэрозолям обусловлено ультрадисперсными частицами с  $d < 200$  нм. Медианный диаметр  $X(d)$  при функционировании высокотемпературных источников аэрозолей в среднем составляет  $d \sim 130$  нм, что несколько выше, чем для амбиентных аэрозолей, присутствующих в воздухе ( $d \sim 90$ –105 нм). Данные частицы, преимущественно откладывающиеся в бронхиальных путях и альвеолярном отделе легких, вносят основной вклад в радиационное действие аэрозолей.
3. Использование продуктов распада радона с характерным только для этих аэрозолей мультимодальным распределением позволяет изучать проницаемость аэрозольных фильтров в области АМТД 1–20 нм, практически недоступной для других методов. Частицы, относящиеся к моде Айткена (АМТД  $\sim 20$  нм) и начальному участку моды аккумуляции обладают существенно более высокой проницаемостью, чем неприсоединенные продукты распада радона (АМТД  $\sim 1$  нм), что необходимо учитывать при измерении аэрозолей, содержащих ДПР радона.
4. При интерпретации результатов радиометрических измерений ОА ДПР радона необходимо учитывать в сдвиг равновесия между продуктами распада отдельно для неприсоединенных продуктов распада радона и для продуктов распада, ассоциированных с аэрозольными частицами.



5. Разработана комбинированная система для изучения распределения радиоактивных аэрозолей по размерам с широким диапазоном размеров частиц от 0,5 нм до 20 мкм. Система продемонстрировала работоспособность при концентрациях аэрозольных частиц от  $5 \cdot 10^2$  до  $4 \cdot 10^4$  см<sup>-3</sup>.

### **Перспективы дальнейшей разработки темы**

Дальнейшая разработка данной темы может быть продолжена по следующим направлениям: исследование новых модификаций фильтров Петрянова; проведение экспериментов по изучению функций проницаемости фильтров и устройств для определения размерного распределения аэрозолей с использованием монодисперсных радиоактивных и нерадиоактивных аэрозольных частиц; проведение измерений размерного распределения радиоактивных аэрозолей в реальных условиях с использованием разработанной универсальной измерительной системы.

## СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ

- АМАД – медианный по активности аэродинамический диаметр
- АМТД – медианный по активности термодинамический диаметр
- ВОЗ – Всемирная организация здравоохранения
- ДАС – диффузионный аэрозольный спектрометр
- ДИ – доверительный интервал
- ДПР – дочерние продукты распада
- ЛНР – логнормальное распределение
- ЛОС – летучие органические соединения
- МДОА – минимально детектируемая объемная активность
- МКРЗ – Международная комиссия по радиологической защите
- ММД – массовый медианный диаметр
- ММФ – метод многослойных фильтров
- НКДАР ООН – Научный комитет по действию атомной радиации при  
Организации Объединенных Наций
- НСП – неисключенная систематическая погрешность
- ОА – объемная активность
- ПМД – поверхностный медианный диаметр
- СГ – среднее геометрическое
- СГО – стандартное геометрическое отклонение
- СКО – среднее квадратическое отклонение
- СМД – счетный медианный диаметр
- УДЧ – ультрадисперсные частицы
- ФП – фильтры Петрянова

ЭРОА – эквивалентная равновесная объемная активность

ЭС – электронные сигареты

GSA – Graded Screen Array

NC – концентрация аэрозольных частиц

**СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Фукс, Н. А. Механика аэрозолей / Н. А. Фукс. – М : Издательство Академии наук СССР, 1955. – 352 с.
2. Фукс, Н. А. Успехи механики аэрозолей / Н. А. Фукс. – М : Издательство Академии наук СССР, 1961. – 160 с.
3. Hinds, W. C. Aerosol technology. Properties, behavior, and measurement of airborne particles. Second edition / W. C. Hinds. – NY: John Wiley and Sons, Inc. – 1999. – 484 p.
4. Vincent, J. H. Aerosol Sampling. Science, Standards, Instrumentation and Applications / J. H. Vincent. – Chichester : John Wiley and Sons, Inc. – 2007. – 616 p.
5. Грин, Х. Аэрозоли – пыли, дымы и туманы / Х. Грин, В. Лейн. – Л : Химия, 1972. – 428 с.
6. Aerosols – Science and Technology / ed. by I. Agranovsky. – Weinheim : WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. – 2010. – 464 p.
7. Chamberlain, A. C. Radioactive Aerosols / A. C. Chamberlain. – Cambridge University Press. – 1991. – 256 p.
8. Schery, S. D. Understanding Radioactive Aerosols and Their Measurement / S. D. Schery. – Dordrecht: Springer Science+Business Media. – 2001. – 330 p.
9. Papastefanou, C. Radioactive aerosols. Radioactivity in the environment. V. 12. / C. Papastefanou. – Amsterdam : Elsevier. – 2008. – 172 p.
10. Maiello, M. L. Radioactive air sampling methods/ M. L. Maiello, M. D. Hoover. – Taylor and Francis Group, LLC. – 2011. – 562 p.
11. Ruzer, L. S. Aerosols handbook. Measurement, dosimetry, and health effects/ L. S. Ruzer, N. H. Harley. – CRC press, 2013. – 636 p.
12. Источники, эффекты и опасность ионизирующей радиации: доклад НКДАР ООН за 1988 г. Т. 1 – М. : Мир, 1992. – 552 с.
13. United Scientific Committee on the Effects of Atomic radiation (UNSCEAR). UNSCEAR 2006 Report: Annexe E: Source-to-effects assessment for radon in homes and workplaces. – NY : United Nations. – 2009.

14. WHO handbook on indoor radon: a public health perspective. – Geneve : World Health Organization. – 2009. – 108 p.
15. Рузер, Л. С. Радиоактивные аэрозоли / Л. С. Рузер. – М. : Изд-во стандартов, 1968. – 191 с.
16. Крисюк, Э. М. Радиационный фон помещений / Э. М. Крисюк. М. : Энергоатомиздат, 1989.
17. Жуковский, М. В. Радон: измерение дозы, оценка риска / М. В. Жуковский, И. В. Ярмошенко. – Екатеринбург : УрО РАН, 1997. – 232 с.
18. Киселев, С. М. Радон: от фундаментальных исследований к практике регулирования / С. М. Киселев, М. В. Жуковский, И. П. Стамат и др. – М.: Изд-во «ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А. И. Бурназяна ФМБА России», 2016. – 432 с.
19. Seinfeld, J. H. Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change / J. H. Seinfeld, S. N. Pandis. – NY, Chichester : John Wiley & Sons. – 1998. – 1152 p.
20. Thomas, D. Aerosol Filtration / D. Thomas, A. Charvet, N. B. Monnier et al. – Oxford : Elsevier. – 2017. – 226 p.
21. Cheng-Wei, F. Characterization of emissions from portable household combustion devices: particle size distributions, emission rates and factors, and potential exposures / F. Cheng-Wei, Junfeng (Jim) Zhang // Atmospheric Environment. – 2001. – V. – 35. – P. 1281–1290.
22. Roy, A. A. Particles emitted from indoor combustion sources: size distribution measurement and chemical analysis / A. A. Roy, S. P. Baxla, Tarun Gupta, R. Bandyopadhyaya, S. N. Tripathi // Inhalation Toxicology. – 2009. – V. 21, N 10. – P. 837–848.
23. Alvin, C. K. L. Inhalation transfer factors for air pollution health risk assessment / C. K. L. Alvin, T. L. Thatcher, W. Nazaroff // J. Air Waste Manage. Assoc. – 2000. – V. 50. – P. 1688–1699.

24. Oberdorster, G. Correlation between Particle Size, In Vivo Particle Persistence, and Lung Injury / G. Oberdorster, J. Ferin, B. E. Lehnert // *Environ. Health Perspect.* – 1994. – V. 102, Suppl 5. – P. 173–179.
25. Schwartz, J. Is daily mortality associated specifically with fine particles? / J. Schwartz, D. W. Dockery, L. M. Neas // *J. Air Waste Manage. Assoc.* – 1996. – V. 46. – P. 927–939.
26. Seaton, A. Particulate air pollution and acute health effects / A. Seaton, W. MacNee, K. Donaldson, D. Godden // *Lancet.* – 1995. – V. 345. – P. 176–178.
27. Afshari, A. Characterization of indoor sources of fine and ultrafine particles: a study conducted in a full-scale chamber / A. Afshari, U. Matson, L. E. Ekberg // *Indoor Air.* – 2005. – V. 15. – P. 141–150.
28. Wallace, L. Continuous Monitoring of Ultrafine, Fine, and Coarse Particles in a Residence for 18 Months in 1999-2000 / L. Wallace, C. Howard-Reed // *J. Air Waste Manage. Assoc.* – 2002. – V. 52, N 7. – P. 828–844.
29. Cheng, Y. S. W. Incense Smoke: Characterization and Dynamics in Indoor Environments / Y. S. Cheng, W. E. Bechtold, C. C. Yu et al. // *Aerosol Science and Technology.* – 1995. – V. 23, N 3. – P. 271–281.
30. King, B. A. Trends in Awareness and Use of Electronic Cigarettes Among US Adults, 2010–2013 / B. A. King, R. Patel, K. H. Nguyen et al. // *Nicotine & Tobacco Research.* – 2015. – V. 17, N 2. – P. 219–227.
31. Zhao, J. Assessing electronic cigarette emissions: linking physico-chemical properties to product brand, e-liquid flavoring additives, operational voltage and user puffing patterns / J. Zhao, J. Nelson, O. Dada et al. // *Inhalation Toxicology.* – 2018. – V. 30, N 2. – P. 78–88.
32. Ji, X. Characterization of particles emitted by incense burning in an experimental house / X. Ji, O. Le Bihan, O. Ramalho et al. // *Indoor Air.* – 2010. – V. 20. – P. 147–158.

33. Goel, A. Characteristics of Exposure to Particles due to Incense Burning inside Temples in Kanpur, India / A. Goel, R. Wathore, T. Chakraborty et al. // *Aerosol and Air Quality Research*. – 2017. V.17. – P. 608–615.
34. Chang, J. Y. Aliphatic aldehydes and allethrin in mosquito-coil smoke / J. Y. Chang, J. M. Lin // *Chemosphere*. – 1998. – V. 36, N. 3, P. 617–624.
35. Liu, W., Mosquito Coil Emissions and Health Implications/ W. Liu, J. Zhang, J. H. Hashim et al. // *Environ Health Perspect*. – 2003. – V. 111. – P. 1454–1460.
36. Kulmala, M. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations / M. Kulmala, H. Vehkamäki, T. Petaja et al. // *Aerosol Science*. – 2004. – V. 35. – P. 143–176.
37. O’Dowd, C. D. Marine aerosol formation from biogenic iodine emissions / C. D. O’Dowd, J. L. Jimenez, R. Bahreini et al. // *Nature*. – 2002. – V. 417. – P. 632–636.
38. Myhre, G. Anthropogenic and Natural Radiative Forcing Climate Change 2013/ G. Myhre, D. Shindell, F.-M. Bréon et al. // *The Physical Science Basis Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. – 2013. – Cambridge: Cambridge University Press. – P. 659–740.
39. Myhre, G. Radiative forcing of the direct aerosol effect from AeroCom phase II simulations / G. Myhre, B. H. Samset, M. Schulz // *Atmos. Chem. Phys.* – 2013. – V. 13. – P. 1853–1877.
40. Lohmann, U. Global indirect aerosol effects: a review / U. Lohmann, J. Feichter // *Atmos. Chem. Phys.* – 2005. – V. 5. – P. 715–737.
41. Partanen, A.-I. Climate and health implications of future aerosol emission scenarios / A.-I. Partanen, J.-S. Landry, H. D. Matthews // *Environ. Res. Lett.* – 2018. – V.13. – 024028.
42. Radioactive aerosols produced by radon in room air / T.T. Mercer, W.A. Stowe, // *Inhaled Particles III, Vol. II*. Surrey, UK : Unwin Brothers Limited / The Gresham Press. – 1971. – P. 839–851.

43. Kruger, J. Measurement of the attachment coefficient of radon-220 decay products to monodispersed aerosols / J. Kruger, M. Andrews // *J. Aerosol Sci.* – 1976. – V. 7. – P. 21–36.
44. Porstendörfer, J. Influence of nuclei concentration and humidity upon the attachment rate of atoms in the atmosphere / J. Porstendörfer, T. T. Mercer // *Atmos. Environ.* – 1978. – V. 12. – P. 2223–2228.
45. Kruger, J. A comparison of the attachment of the decay products of radon-220 and radon-222 to monodispersed aerosols / J. Kruger, J. F. Nöthling // *J. Aerosol Sci.* – 1979. – V. 10. – P. 571–579.
46. Porstendörfer, J. Influence of electric charge and humidity upon the diffusion coefficient of radon decay products / J. Porstendörfer, T. T. Mercer, // *Health Phys.* – 1979. – V. 37. – P. 191–199.
47. Porstendörfer, J. Experimental determination of the attachment coefficients of atoms and ions on monodispersed aerosols / J. Porstendörfer, G. Röbig, A. Ahmed // *J. Aerosol Sci.* – 1979. – V. 10. – P. 21–28.
48. Bondietti, E.A. Aerodynamic size associations of natural radioactivity with ambient aerosols / E. A. Bondietti, C. Papastefanou, C. Rangarajan // *ACS Symposium Series.* – 1987. – V. 331. P. 377–397.
49. Papastefanou, C. Aerodynamic size associations of  $^{212}\text{Pb}$  and  $^{214}\text{Pb}$  in ambient aerosols / C. Papastefanou, E. A. Bondietti // *Health Phys.* – 1987. – V. 53. – P. 461–472.
50. Porstendörfer, J. Properties and behavior of radon and thoron and their decay products in the air / J. Porstendörfer // *J. Aerosol Sci.* – 1994. – V. 25. – P. 219–263.
51. Grundel, M. Differences between the activity size distributions of the different natural radionuclide aerosols in outdoor air / M. Grundel, J. Porstendörfer // *Atmos. Environ.* – 2004. – V.38. – P. 3723–3728.
52. Papastefanou, C. Radon Decay Product Aerosols in Ambient Air / C. Papastefanou // *Aerosol and Air Quality Research.* – 2009. – V. 9. – P. 385–393.



53. UNSCEAR (1993). United Nations Scientific Committee of the Effects of Ionizing Radiation, UNSCEAR (1993). Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations, NY. – 1993.
54. UNSCEAR (2000). United Nations Scientific Committee on the Effects of Ionizing Radiation, Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations, NY. – 2000.
55. Skubacz, K. Size distribution of ambient and radioactive aerosols formed by the short-lived radon progeny / K. Skubacz, K. Wołoszczuk // J. of Sustainable Mining. – 2019. – V. 18. – P. 61–66.
56. Zhukovsky, M. Anomalously high unattached fraction of  $^{220}\text{Rn}$  decay products in the atmosphere of monazite storage facility/ M. Zhukovsky, M. Vasyanovich, A. Onishchenko et al. // Applied Radiation and Isotopes. – 2019. – V. 151. – P. 1–6.
57. Biennann, A. H. Attachment of Radon Progeny to Cigarette-Smoke Aerosols / A. H. Biennann, S. S. Sawyer // Lawrence Livermore National Laboratory. Report UCRL-CR-120647. – 1995. – 42 p.  
[https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/\\_Public/26/073/26073217.pdf](https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/26/073/26073217.pdf).
58. El-Hussein. Unattached fractions, attachment and deposition rates of radon progeny in indoor air / El-Hussein / Applied Radiation and Isotopes. – 1996. – V. 47. – P. 515–523.
59. Holub, R. F., Measurement of  $^{218}\text{Po}$  diffusion coefficient spectra using multiple wire screens; radon and its decay products / R. F. Holub, E. O. Knutson // Radon and its decay products. Occurrence, properties, and health effects. American Chemical Society. – 1987. – P. 340–356.
60. Hopke, P. K., The initial atmospheric behavior of radon decay products / P. K. Hopke // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 1996. – V. 203. – P. 353–375.

61. McLaughlin, J.P. Attachment of Radon Daughter Products to Condensation Nuclei / J. P. McLaughlin // Proc. Royal Irish Academy. Section A: Math. and Phys. Sci. – 1972. – V.72. – P. 51–70.
62. Raes, F. Description of the properties of unattached  $^{218}\text{Po}$  and  $^{212}\text{Pb}$  particles by means of the classical theory of cluster formation / F. Raes // Health Phys. – 1985. – V. 49. – 1177–1187.
63. Raes, F. A model for size distributions of radon decay products in realistic environments / F. Raes, A. Janssens, H. Vanmarcke // Radon and its decay products. Occurrence, properties, and health effects. American Chemical Society. – 1987. – P. 324–339.
64. Subba Ramu, M. C. A Study of the Attachment of Radon Daughter Atoms to Aerosol Particles / M. C. Subba Ramu, T. S. Muraleedharan, K. G. Vohra // PAGEOPH. – 1984/85. – V.122. – P.133–140.
65. Tokonami, S. Experimental verification of the attachment theory of radon progeny onto ambient aerosols / S. Tokonami // Health Phys. – 2000. – V. 78. – P. 74–79.
66. Cheng, Y. S. Intercomparison of activity size distribution of thoron progeny and a mixture of radon and thoron progeny / Y. S. Cheng, T. R. Chen, H. C. Yeh et al. // J. Envir. Radioactivity. – 2000. – V. 51. – P. 59–78.
67. Raabe, O. G. Measurement of the Diffusion Coefficient of Radium A / O. G. Raabe // Nature. – 1968. –V. 217. – 1143–1145.
68. Dankelmann, V. Determination of neutralisation rates of  $^{218}\text{Po}$  ions in air / V. Dankelmann, A. Reineking, J. Porstendörfer // Radiation Protection Dosimetry. – 2001. – V. 94, N. 4. – P. 353–357.
69. Porstendörfer, J. Free fractions, attachment rates, and plate-out rates of radon daughters in houses / J. Porstendörfer, A. Reineking, K.H. Becker // Radon and its decay products. Occurrence, properties, and health effects. American Chemical Society. – 1987. – P. 285–300.

70. Meisenberg, O. Specific properties of a model of thoron and its decay products in indoor atmospheres / O. Meisenberg, J. Tschiersch // *Nukleonika*. – 2010. – V. 55. – P. 463–469.
71. Васянович, М. Е. Оценка распределения радиоактивных аэрозолей по размеру в атмосфере реакторного зала ИВВ-2М / М. Е. Васянович, А. А. Екидин, М. В. Жуковский и др. // *Атомная энергия*. – 2016. – Т. 121, № 4. – С. 240–242.
72. Grainger, R. G. Some Useful Formulae for Aerosol Size Distributions and Optical Properties / R. G. Grainger // *Электронный ресурс*:  
<http://eodg.atm.ox.ac.uk/eodg/gray/2013Grainger.pdf>
73. Wang, J. Effects of Particle Size and Morphology on Filtration of Airborne Nanoparticles / J. Wang // *KONA Powder and Particle J.* – 2013. – N.30. – P. 256–266.
74. Коренков, И. П. Методы определения радиоактивных веществ в воздухе / И. П. Коренков, В. Ф. Кириллов. – М.: Медицина, 1978. – 128 с.
75. Scott, E. S. An experimental study of filter loading with liquid aerosols / E. S. Scott, C. Da Ren, Y. H. P. David // *American Industrial Hygiene Association*. – 2001. <https://www.cdc.gov/niosh/surveyreports/pdfs/218-05r.pdf>
76. Кирш, А. А. Фильтрация аэрозолей волокнистыми материалами ФП / А. А. Кирш, А. К. Будыка, В. А. Кирш // *Рос. хим. ж. (Ж. Рос. хим. об-ва им. Д.И. Менделеева)*. – 2008. – Т. LII, № 5. – С. 97–102.
77. Maroto, M. D. Filtration Efficiency of Intermediate Ventilation Air filters on Ultrafine and Submicron Particles / M. D. Maroto // *Master's Thesis. Chalmers University of Technology Göteborg, Sweden*. – 2011. – 75 p.  
<https://odr.chalmers.se/bitstream/20.500.12380/144154/1/144154.pdf>
78. Davies C. N. *Air Filtration* / C. N. Davies. – London : Academic Press. – 1973. – 171 p.
79. Brock, T. D. *Membrane Filtration: A User's Guide and Reference Manual* / T. D. Brock. – Madison, WI : Science Tech Publishers. – 1983. – 381 p.

80. Brown, R. C. Air Filtration: An Integrated Approach to the Theory and Applications of Fibrous Filters / R. C. Brown. – Oxford : Pergamon Press. – 1993. – 272 p.
81. Будыка, А. К. Волокнистые фильтры для контроля загрязнения воздушной среды / А. К. Будыка, Н. Б. Борисов – М. : ИздАт, 2008. – 358 с.
82. Петрянов, И. В. Волокнистые фильтрующие материалы ФП / И. В. Петрянов, В. И. Козлов, П. И. Басманов и др. – М. : Химия, 1968. – 79 с.
83. Петрянов И. В. «Лепесток» (легкие респираторы) / И. В. Петрянов, В. С. Кощеев, П. И. Басманов и др. – М. : Наука, 1984.– 216 с.
84. Басманов П. И. Высокоэффективная очистка газов от аэрозолей фильтрами Петрянова / П. И. Басманов, В. Н. Кириченко, Ю. Н. Филатов и др. – М. : Наука, 2003. – 271 с.
85. Басманов, П. И. Фильтры АФА. Каталог-справочник / П. И. Басманов, Н. Б. Борисов. – М. : Атомиздат, 1970. – 44 с.
86. Hoover, M. D. Independent evaluation of air filter media from Chernobyl / M. D. Hoover, A. F. Fencel, G. J. Vargo // Report LRRI 19990901. PNNL – 13053. – 1999. – 65 p.  
<https://digital.library.unt.edu/ark:/67531/metadc627790/>
87. Dupoux, J. Air filter efficiency as a function of particle size and velocity / J. Dupoux, A. Briand // Water, Air, and Soil Pollution. – 1974. – V. 3. – P. 537–549.
88. Caroff, M. Effect of pore and particle size distribution efficiencies of membrane filters / M. Caroff, K. R. Chouhary, J. W. Gentry // Aerosol Science. – 1973. – V. 4. – P. 93–102.
89. Liu, B. Y. H. Efficiency of Membrane and Nuclepore Filters for Submicrometer Aerosols / B. Y. H. Liu, K. W. Lee // Environmental Science & Technology. – 1976. – V. 10, N. 4. – P. 345–350.

90. John, W. Measurements of the filtration efficiencies of selected filter types/ W. John, G. Reischl // Atmospheric Environment. – 1978. – V.12. – P. 2015–2019.
91. Lee, K. W. On the Minimum Efficiency and the Most Penetrating Particle Size for Fibrous Filters/ K. W. Lee, B. Y. H. Liu // Journal of the Air Pollution Control Association. – 1980. – V. 30, N 4. – P. 377–381.
92. Serfozo, N. Size-Resolved Penetration of Filtering Materials from CE-Marked Filtering Facepiece Respirators / N. Serfozo, J. Ondráček, N. Zíková et al. // Aerosol and Air Quality Research. – 2017. – V. 17. – P. 1305–1315.
93. Soo, J.-C. Air sampling filtration media: Collection efficiency for respirable size-selective sampling/ J.-C. Soo, K. Monaghan, T. Lee et al.// Aerosol Sci Technol. – 2016. – V. 50, N 1. – P. 76–87.
94. Ward, M. Modeling Filter Bypass: Impact on Filter Efficiency/ M. Ward, J. Siegel // Symposium, ASHRAE Transactions. – 2005. – V. 111, Pt. 1. – Pub. OR-05-17-1.  
<https://pdfs.semanticscholar.org/6524/5f00db8e7a817e2724a80c058d947db5bd61.pdf>.
95. Петрянов-Соколов, И. В. Аэрозоли / И. В. Петрянов-Соколов, А. Г. Сутугин. – М. : Наука, 1989. – 144 с.
96. Marple, V. A. History of Impactors – The First 110 Years / V. A. Marple // Aerosol Science and Technology. – 2004. – V. 38, N 3. – P. 247–292.
97. Knutson E. O. History of Diffusion Batteries in Aerosol Measurements / E. O. Knutson // Aerosol Science and Technology. – 1999. – V. 31, N 2–3. – P. 83–128.
98. Tokonami, S. Particle size measurement of radon decay products using MOUDI and GSA / S. Tokonami, K. Fukutsu, Y. Yamada et al. // International Congress Series. 2005. – V. 1276. – P. 278–280.
99. Chen, T. R., Nanometer particle size and concentration from thoron radiolysis / T. R. Chen, C. J. Tung, Y. S. Cheng // Aerosol science and technology. – 1998. – V. 28. N 2. – P. 173–181.

100. Fukutsu, K. Newly designed graded screen array for particle size measurements of unattached radon decay products / K. Fukutsu, Y. Yamada, S. Tokonami et al. // *Review of scientific instruments*. – 2004. – V. 75, N 3. – P. 783–788.
101. Cheng, Y.S. Use of a graded diffusion battery in measuring the activity size distributions of thoron progeny / Y.S. Cheng, Y. F. Su, G.J. Newton et al. // *Journal of Aerosol Science*. – 1992. – V. 23, N. 4. – P. 361–372.
102. Cheng, Y.S. Intercomparison of activity size distribution of thoron progeny and a mixture of radon and thoron progeny / Y. S. Cheng, T. R. Chen, H. C. Yeh et al. // *Journal of environmental radioactivity*. – 2000. V. 51. N 1. P. 59–78.
103. Cheng, Y. S. Theory of a screen-type diffusion battery / Y. S. Cheng, H. C. Yeh // *Journal of aerosol science*. – 1980. – V. 11. – P. 313–320.
104. Огородников, Б. И. Радиоактивные аэрозоли объекта "Укрытие" 1986–2006 гг. / Б. И. Огородников, Э. М. Пазухин, А. А. Ключников. – Чернобыль: Ин-т проблем безопасности АЭС. – 2008. – 456 с.
105. Припачкин, Д. А. Экспериментальное исследование дисперсного состава аэрозолей методом многослойных фильтров и с помощью каскадного устройства / Д. А. Припачкин, А. К. Будыка, В. О. Хмелевский и др. // *Атомная энергия*. – 2013. – Т. 144, № 3. – С. 174–177.
106. Рогозина, М. А. Интерпретация данных с диффузионной батареи экранного типа с последовательным расположением улавливающих элементов/ М. А. Рогозина, М. В. Жуковский, А. А. Екидин // *Приборы и техника эксперимента*. – 2013. – №6. – С. 74–76.
107. Zhukovsky, M. V. Size distribution of radon decay products in the range 0.1–10 nm / M. V. Zhukovsky, M. A. Rogozina, A. N. Suponkina // *Radiation Protection Dosimetry*. – 2014. – V. 160, N 1–3. – P.192–195.
108. Maher, E. F. EM algorithm reconstruction of particle size distributions from diffusion battery data/ E. F. Maher, N. M. Laird // *Journal of aerosol science*. – 1985. – V. 16, N 6. – P. 557–570.

109. Raabe O. G. A general method for fitting size distributions to multicomponent aerosol data using weighted least-squares // *Environmental science & technology*. – 1978. – №10 (12). – P.1162–1167.
110. Fuchs N.A. Aerosol impactors (a review) / N.A. Fuchs // *Fundamental of Aerosol Science*. NY : Wiley. – 1978. – P. 1–81.
111. Marple, V. A. Inertial Impactors: Theory, Design and Use / V. A. Marple, K. Willeke // *Fine Particles*. – Academic Press. – 1976. – P. 411–446.
112. Измеритель аэрозольных частиц импакторный пятикаскадный АИП-2. Руководство по эксплуатации. БВАП.408699.002РЭ.
113. Васянович, М. Е. Влияние ультрадисперсных аэрозолей ДПР радона на измерения, выполняемые при помощи каскадных импакторов / М. Е. Васянович, М. Ю Мостафа., М. В. Жуковский и др. // *АНРИ*. – 2017. – № 2. – С. 32–39.
114. Vasyanovich, M. Ultrafine aerosol influence on the sampling by cascade impactor / M. Vasyanovich, M. Zhukovsky, M. Mostafa // *Radiation Protection Dosimetry*. – 2017.– V. 176, N 1–2, P. 49–52.
115. Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. ICRP Publication 66 // *Ann. ICRP*. – 1994. – V. 24, N 1–3.
116. Guide for the Practical Application of the ICRP Human Respiratory Tract Model. ICRP Supporting Guidance 3 // *Ann. ICRP*. – 2002. – V. 32, N 1–2.
117. Rogozina, M. Thoron progeny size distribution in monazite storage facility / M. Rogozina, M. Zhukovsky, A. Ekidin et al. // *Radiation Protection Dosimetry*. – 2014. – V. 162, N 1–2. – P. 10–13.
118. Khalaf, H. N. B. Comparison of radioactive aerosol size distributions (Activity, number, mass, and surface area) / H. N. B. Khalaf, M. Y. A. Mostafa, M. Vasyanovich // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2019. – V. 145. – P. 95–100.
119. Miller, S. L. Environmental tobacco smoke particles in multi zone indoor environments / S. L. Miller, W. W. Nazaroff // *Atmospheric Environment*. – 2001. – V. 35. – P. 2053–2067.

120. Nazaroff, W. W. An improved technique for measuring working levels of radon daughters in residences / W. W. Nazaroff // *Health Phys.* – 1980. – V. 39, N 4. – P. 683–689.
121. Mostafa, M. Y. A. Radon decay products equilibrium at different aerosol concentrations / M. Y. A. Mostafa, H. N. B. Khalaf, M. Zhukovsky // *Applied Radiation and Isotopes.* – 2020. – V. 156. – Article 108981.
122. Thomas, J. W. Measurement of radon and radon daughters in air / J. W. Thomas, // *Health Phys.* – 1972. – V. 92. – P. 283–289.
123. Stranden, E. A Dosimetric Discussion Based on Measurements of Radon Daughter Equilibrium and Unattached Fraction in Different Atmospheres / E. Stranden, T. Strand // *Radiation Protection Dosimetry.* – 1986. – V. 16. – P. 313–318.
124. Jasaitis, D. Influence of aerosol particle concentration on volumetric activities of indoor radon progeny / D. Jasaitis, A. Girgždys // *Lith. J. Phys.* – 2011. – V. 51. – P. 155–161.
125. Mohery, M. Unattached fractions and aerosol attached of radon progeny in indoor air / M. Mohery, A. El-Hussein, S. H. Alddin et al. // *International J. of the Physical Sciences.* – 2012. – V. 7(29). – P. 5089–5096.
126. Khalaf, H. N. B. Radiometric efficiency of analytical filters at different physical conditions / H. N. B. Khalaf, M. Y. A. Mostafa, M. Zhukovsky // *J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry.* – 2019. – V. 319, P. 347–355.
127. Khalaf, H. N. B. Radioactive aerosol permeability through Russian radiometric analytical (PF) filters / H. N. B. Khalaf, M. Y. A. Mostafa, M. Zhukovsky // *J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry.* – 2019. – V. 319. – P. 1283–1289.
128. Khalaf, H. N. B. A combined system for radioactive aerosol size distribution measurements of radon decay products / H. N. B. Khalaf, M. Y. A. Mostafa, M. Zhukovsky // *Radiat. Phys. Chem.* – 2019. – V. 165. – Article 108402.



129. Будыка, А. К. Радиоактивные аэрозоли Чернобыльского генезиса/ А. К. Будыка, Б. И. Огородников // Журнал физической химии, 1999, Т. 73, № 2, С. 375–384.