

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого
Президента России Б.Н. Ельцина»

На правах рукописи

Хям

Халаф Хям Назми Бадр

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

01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Екатеринбург – 2021

Работа выполнена на кафедре экспериментальной физики Физико-технологического института ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина».

Научный руководитель: доктор технических наук, профессор,
Жуковский Михаил Владимирович

Официальные
оппоненты:

Загайнов Валерий Анатольевич, доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник, ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», г. Москва, профессор кафедры общей физики (№ 6) Института общей профессиональной подготовки;

Соломонов Владимир Иванович, доктор физико-математических наук, профессор, ФГБУН Институт электрофизики Уральского отделения Российской академии наук, г. Екатеринбург, ведущий научный сотрудник лаборатории квантовой электроники;

Казалов Владимир Владимирович, кандидат физико-математических наук, Филиал Баксанская нейтринная обсерватория Федерального государственного бюджетного учреждения науки Института ядерных исследований Российской академии наук (Кабардино-Балкарская Республика, с. Нейтрино), старший научный сотрудник лаборатории низкофоновых исследований.

Защита состоится «19» февраля 2021 г. в 12:00 ч на заседании диссертационного совета УрФУ 01.03.15 по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, 21, ауд. И-420 (зал Ученого совета)

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», <https://dissovet2.urfu.ru/mod/data/view.php?d=12&rid=1848>

Автореферат разослан « ___ » _____ 2021 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета

Ищенко Алексей Владимирович

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования

Аэрозоли окружают человека всю его жизнь, 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. Наиболее фундаментальными обзорными работами, посвященными основам физики и механики аэрозолей, несомненно, являются работы Н. А. Фукса не потерявшие своей актуальности и по сей день.

Особое место в физике аэрозолей занимают радиоактивные аэрозоли. Размерное распределение аэрозолей по активности может существенно отличаться от распределения аэрозолей по количеству частиц, их удельной поверхности или массе. Наличие в составе аэрозолей радиоактивных веществ повышает диапазон аналитических средств измерений недоступных для стандартных методов, используемых для нерадиоактивных аэрозолей.

Особое место в изучении поведения радиоактивных аэрозолей занимают исследования свойств дочерних продуктов распада (ДПР) изотопов радона ^{222}Rn и ^{220}Rn (торон). За счет ингаляционного продуктов распада радона создается более половины общей дозы облучения населения от природных источников излучения.

До настоящего времени нет достаточной информации по характеристикам бытовых источников аэрозольных частиц, начиная от традиционных источников, до относительно новых источников, таких как электронные сигареты или устройства IQOS.

Существует широкий ассортимент аэрозольных фильтров, 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 представляет отбор проб ДПР радона, поскольку для них характерен мультимодальное распределение активности в широком диапазоне размеров аэрозольных частиц.

Отдельную задачу представляет разработка средств измерения размерного распределения активности аэрозолей, позволяющих одномоментно определять мультимодальное распределение активности в широком диапазоне, соответствующем респиральной фракции аэрозолей (0,5 нм – 20 мкм) без предварительной информации о дисперсности радиоактивных аэрозолей.

Степень разработанности темы исследования

Сегодня имеется хорошее понимание физики аэрозолей и процессов их взаимодействия со взвешенными частицами, газовой фазой, поверхностями и т. д. Созданы фильтрующие материалы, позволяющие эффективно улавливать аэрозольные частицы. Разработаны средства измерения размерного распределения радиоактивных аэрозолей в различных диапазонах респиральной 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. Кроме того, существует их радиационное 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}Rn , короткоживущие продукты его распада ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi (^{214}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 установлении закономерностей образования и динамики поведения нерадиоактивных аэрозолей, их взаимодействия с продуктами распада радона, а также процессов их регистрации.

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 для бытовых источников аэрозолей 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 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 на их эффективность. Наиболее эффективным фильтром при различных физических условиях является фильтр АФА-РМВ.
4. Фильтры АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20 имеют высокую эффективность для ультрадисперсных мод неприсоединенных ДПР радона с АМТД ~1 нм и проникающих частиц, которые имеют размер более 20 нм.
5. Продемонстрировано, что хотя фильтры Петрянова имеют высокую эффективность для ультрадисперсных мод неприсоединенных ДПР радона с АМТД ~1 нм и проникающих частиц, которые имеют размер более 20 нм, частицы, относящиеся к моде Айткена (АМТД ~ 20 нм), обладают существенно более высокой проницаемостью, чем неприсоединенные продукты распада, и это необходимо учитывать при измерении аэрозолей, содержащих ДПР радона.
6. 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, имеющим 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; 10th 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»; Sixth International Young Researchers' Conference Physics. Technologies. Innovation. dedicated to the 70th 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; 9th 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 диссертации опубликовано 10 научных работ, включая 9 статей в журналах, 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.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность темы исследования, сформулированы цель и задачи работы, представлены основные защищаемые положения, научная новизна и практическая значимость.

В **первой главе** проведен обзор литературных данных по свойствам аэрозолей и методам определения их основных характеристик. Рассмотрены источники образования аэрозолей, дан анализ типичных размеров аэрозольных частиц

различного происхождения. Отмечено, что в последние годы воздействие мелких и ультрадисперсных частиц в воздухе было определено как важный фактор, влияющий на здоровье человека.

Продукты сгорания являются основными источниками газообразных и твердых частиц в помещении. Понимание рисков, связанных с воздействием электронных сигарет (ЭС), стало актуальным из-за их растущего использования и потенциальных токсикологических последствий таких воздействий.

Дана классификация аэрозольных частиц по размерам, охарактеризованы основные моды размерного распределения аэрозольных частиц: крупнодисперсная (> 1 мкм), аккумуляции (0,1–1,0 мкм), мода Айткена (0,01–0,1 мкм), нуклеации ($< 0,01$ мкм).

Рассмотрены характеристики радиоактивных аэрозолей различного происхождения: космогенного происхождения, аэрозоли продуктов деления, продукты распада изотопов радона и др.

Около 85–88 % атомов, образующихся при распаде инертных радиоактивных газов ^{220}Rn и ^{222}Rn или ^{138}Xe и ^{88}Kr образуют молекулярные кластеры размером 1–5 нм, (так называемые *неприсоединенные продукты распада*). Кластеры, содержащие радионуклиды, присоединяются к существующим аэрозольным частицам в атмосфере в течение 1–100 с, образуя *присоединенные продукты распада*. Схема образования молекулярных кластеров изотопов инертных газов и их взаимодействия с аэрозольными частицами представлена на рис. 1 ((Васянович и др., 2016, Zhukovsky et al., 2019).

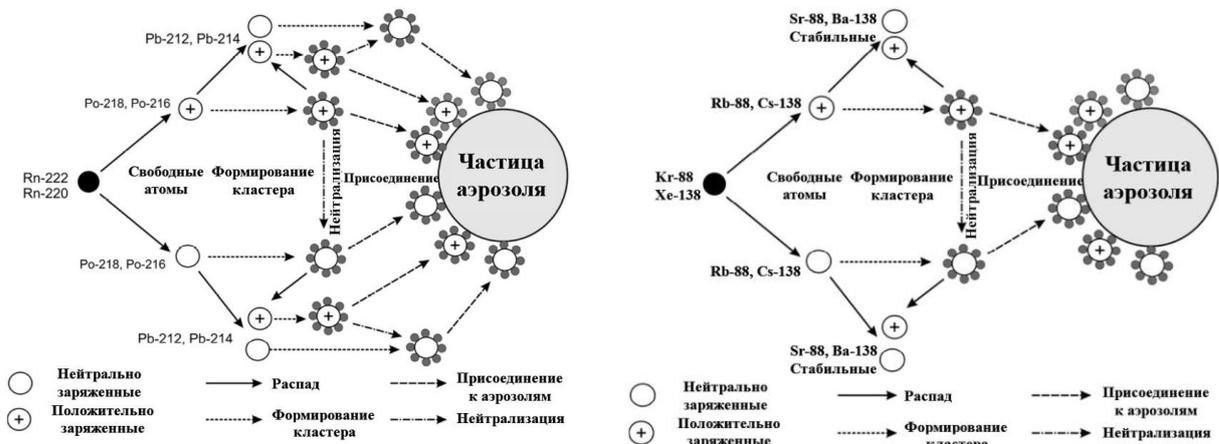


Рис. 1. Схема образования молекулярных кластеров изотопов инертных газов и их взаимодействия с аэрозольными частицами

Дан анализ основных процессов взаимодействия аэрозольных частиц с материалом фильтров, в первую очередь фильтров Петрянова (ФП). Проанализированы основные методы определения размерного распределения радиоактивных аэрозолей: каскадные импакторы, диффузионные батареи, метод многослойных фильтров (ММФ).

В конце главы сформулирована постановка задач исследования диссертационной работы.

Во **второй** главе описаны используемые методы и средства проведения измерений

Для получения распределения по размерам радиоактивных аэрозольных частиц в диапазоне 1–100 нм использована диффузионная батарея экранного типа с последовательным расположением улавливающих элементов разработанная в радиационной лаборатории ИПЭ УрО РАН. Использовался набор от 10 до 20

сетчатых экранов, позволяющий определять размер аэрозольных частиц с активностным медианным термодинамическим диаметром (АМТД) в диапазоне 0,1 – 100 нм.

Интерпретация данных скорости счета с каждого улавливающего элемента диффузионной батареи выполняется при помощи итерационного и математического методов, представленных в работах (Рогозина и др., 2013; Zhukovsky et.al, 2014), и программного пакета, разработанного в ИПЭ УрО РАН.

Использовались два различных каскадных импактора: импактор АИП-2, разработанный ООО «НПП «Доза», г. Зеленоград (диапазон $d_{50\%}$, от 23,3 до 0,8 мкм); импактор, разработанный в Грифитском университете г. Брисбена, Австралия (аналог каскадного импактора Марк-3, диапазон $d_{50\%}$, от 26,4 до 0,42 мкм). Измерение концентрации и размерного распределения нерадиоактивных аэрозолей проводили при помощи диффузионного аэрозольного спектрометра (ДАС), модель 2702-М, работающего в диапазонах 5–200 нм и 0,2–10 мкм с пределом измерений по концентрации 10^5 частиц/см³.

В качестве средства для измерения активности аэрозольных фильтров по α -излучению был использован блок детектирования БДПА-01, использующий сцинтилляционный детектор ZnS(Ag) диаметром 60 мм и фотоэлектронный умножитель.

Камера, в которой генерировались аэрозоли ДПР радона представляет собой два соединенных вместе пластиковых бокса, каждый объемом по 1 м³. Уровни ЭРОА радона в камере составляли 2000 – 4000 Бк/м³. Контроль концентрации аэрозольных частиц проводился при помощи диффузионного аэрозольного спектрометра (ДАС), модель 2702-М.

В **третьей главе** представлены результаты изучения свойств аэрозольных частиц от различных бытовых источников.

Эксперименты проводились в помещении объемом 65 м³. Были исследованы следующие источники аэрозольных частиц: табачная сигарета, электронная сигарета. сигарета IQOS, курение благовоний, термическая обработка пищи, парафиновые свечи, противомоскитная спираль. Среднее значение фоновой концентрации аэрозоля составляло $10\,000 \pm 1\,800$ см⁻³.

На рис. 2 представлена динамика изменения концентрации аэрозольных частиц, для наиболее интенсивных источников аэрозолей.

При использовании IQOS отмечается незначительное (не более чем в 1,5 раза по сравнению с исходным значением) увеличение концентрации ультрадисперсных частиц. Изменения концентраций аэрозолей в диапазоне 300–1 000 нм не отмечается. В связи с малой значимостью данного источника аэрозолей в дальнейшем он был исключен из рассмотрения.

Для описания распределения использовались такие параметры, как счетный медианный диаметр (СМД) и стандартное геометрическое отклонение (СГО) (табл. 1). 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 0,1–1 мкм). Значения СГО для всех источников превышают 1,25, что характеризует полидисперсное распределение частиц по размерам.

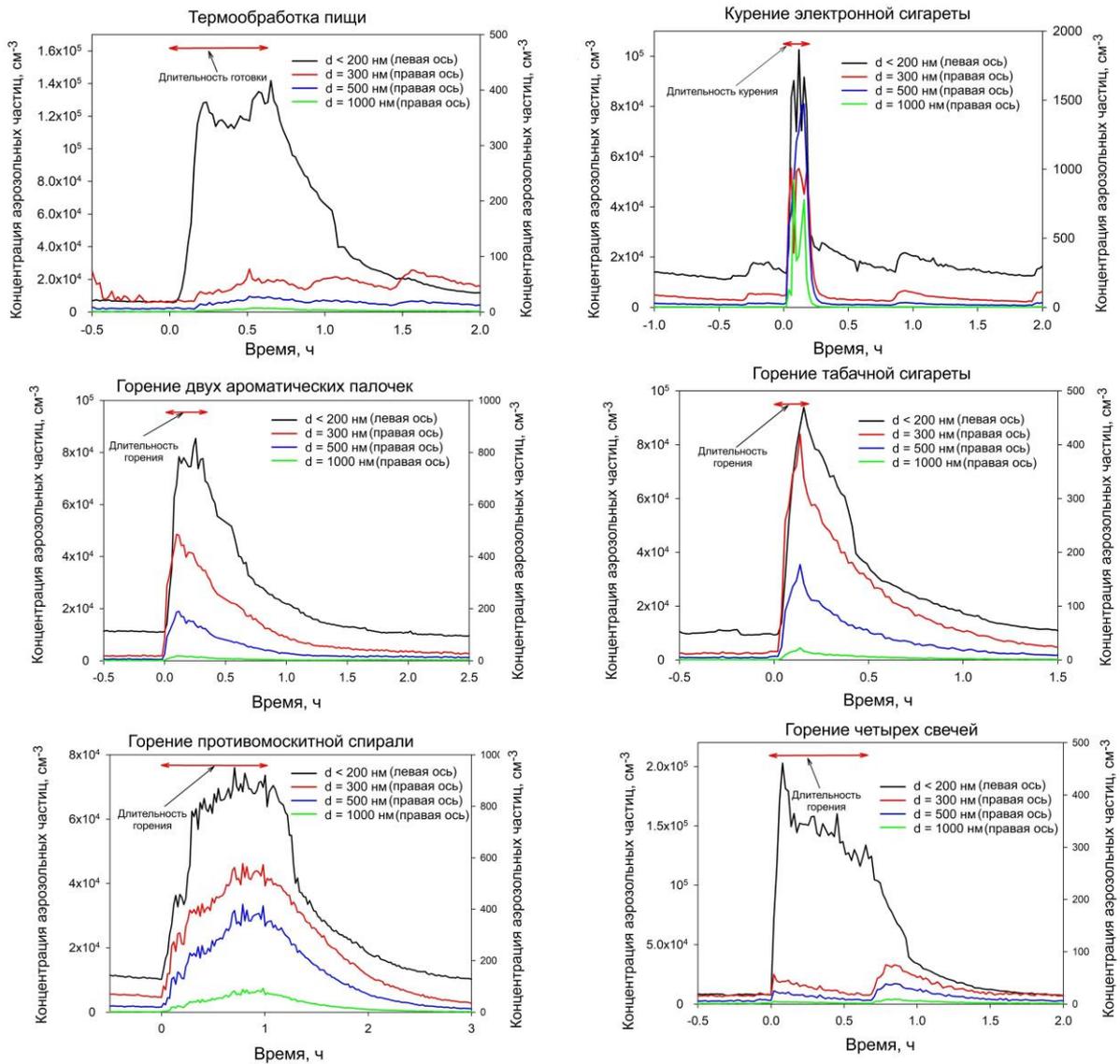


Рис. 2. Динамика изменения концентрации аэрозольных частиц, создаваемых наиболее интенсивными источниками аэрозолей

Численное распределение аэрозольных частиц по размерам определяет размер аэрозольной фракции, максимально воздействующей на человека при ингаляционном поступлении. Токсическое действие аэрозоля, попавшего в организм человека ингаляционным путем, будет пропорционально массе этого аэрозоля. Расчет был выполнен в предположении, что аэрозольные частицы имеют сферические размеры и плотность, близкую к единице. Значения массовой концентрации аэрозолей от различных источников в зависимости от размера аэрозольных частиц и времени представлены в табл. 2.

Скорость присоединения молекулярных кластеров к аэрозольным частицам \bar{X} описывается уравнением

$$\bar{X} = \int_0^{\infty} X(d)dd = \int_0^{\infty} \beta_A(d)Z(d)dd, \quad (1)$$

где $\beta_A(d)$ – коэффициент присоединения к аэрозолям, $Z(d)$ – распределение аэрозолей по размерам. Дифференциальное распределение скорости присоединения $X(d)$ будет с достаточной точностью характеризовать распределение активности ДПР радона по размерам (пример на рис. 3).

Таблица 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

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.

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. 5). 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.

В результате было 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.*

В главе 4 представлены данные по изучению факторов, влияющих на улавливание радиоактивных аэрозолей фильтрами Петрянова. Результаты измерений размерного распределения, проведенные при помощи диффузионной батареи, показаны на рис. 5. На рис. 6 представлено распределение активности аэрозолей, измеренное с помощью двух типов каскадных импакторов. Параметрами распределения активности по размерам являются активностный медианный аэродинамический диаметр, АМАД ~ 500 – 700 нм и СГО = 1,5.

Таблица 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
+ 15 мин	47,3	6,21	15,1	17,0	26,7	7,50
+ 30 мин	29,1	3,71	11,1	6,30	12,0	2,30
$d = 0,5 \text{ мкм}$						
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
+ 15 мин	1,16	1,26	4,16	3,65	12,4	1,83
+ 30 мин	1,26	0,72	2,17	1,44	6,13	0,90
$d = 1 \text{ мкм}$						
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
+ 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
+ 30 мин	1,55	0,58	1,98	1,33	7,10	1,61
$d = 2 \text{ мкм}$						
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
+ 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
+ 30 мин	14,2	4,52	12,5	10,3	47,5	15,3
$d = 5 \text{ мкм}$						
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
+ 15 мин	49,0	20,1	21,0	25,7	69,7	79,8
+ 30 мин	32,3	9,94	10,1	25,4	54,6	47,4
Суммарно 0,3–10 мкм						
До начала	39,7	141	71,8	55,6	40,9	153
Горение	183	2828	164	184	440	202
+ 10 мин	232	269	128	138	446	366
+ 15 мин	177	110	87,1	132	371	330
+ 30 мин	134	44,5	61,2	93,7	261	188

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

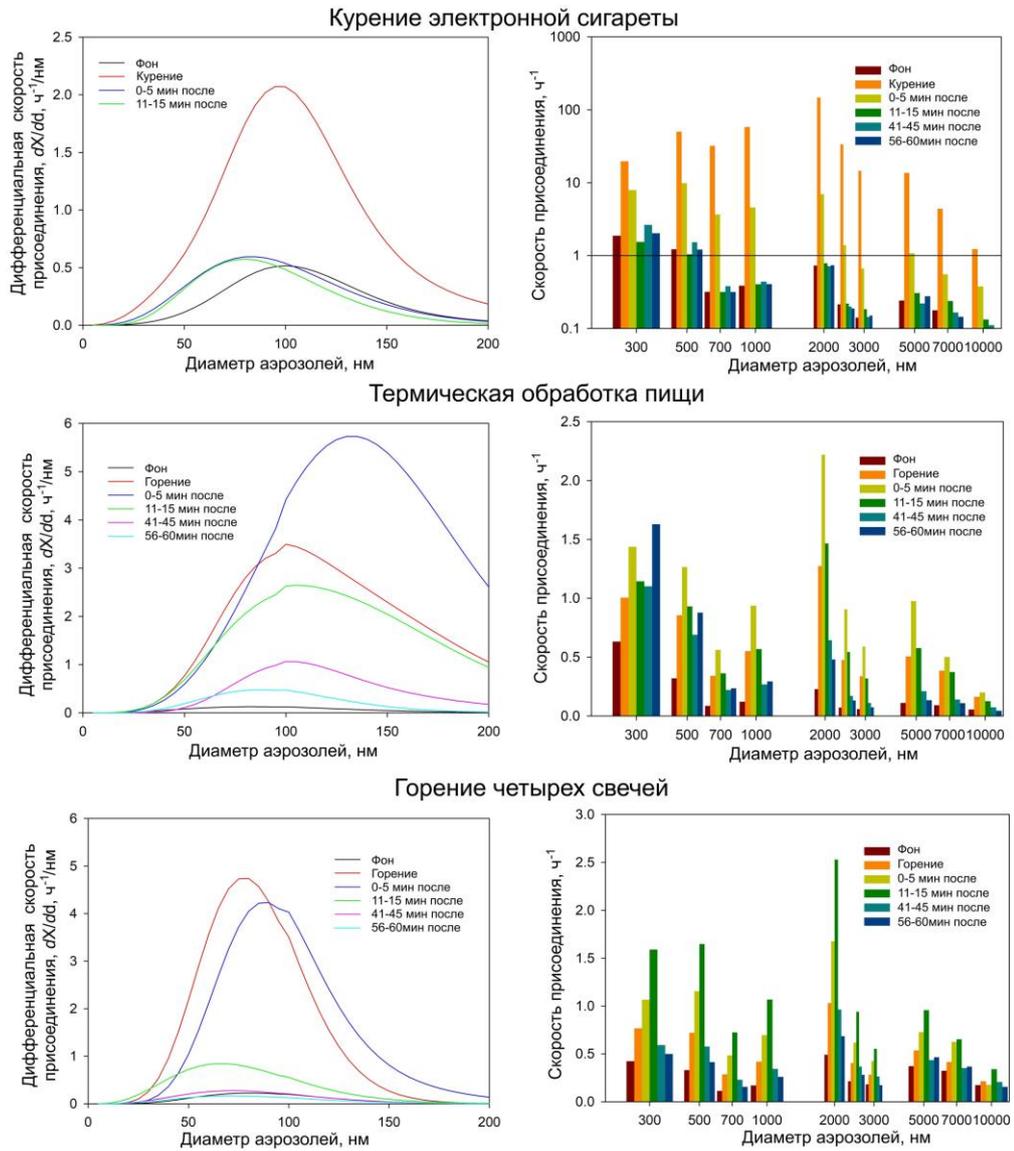


Рис. 3. Распределение скорости присоединения ДПР радона к аэрозольям по размерам аэрозольных частиц

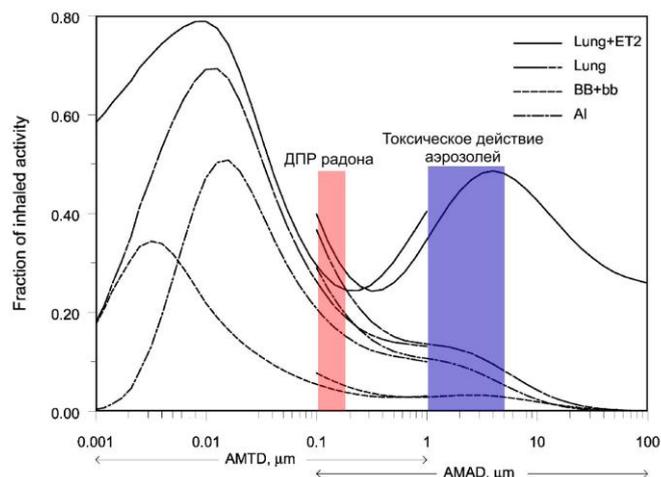


Рис.4. Эффективность отложения аэрозольей в различных отделах респираторного тракта с указанием доминирующих размеров аэрозольей от бытовых источников

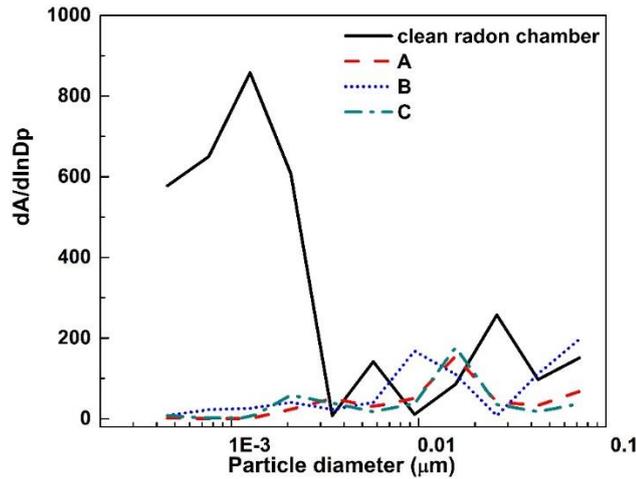


Рис. 5. Распределение активности аэрозольных частиц по размерам по результатам измерений с помощью диффузионной батареи для чистой радоновой камеры и в различное время после поступления (кривые А, В, С соответствуют времени 15, 60 и 80 мин после поступления аэрозоля).

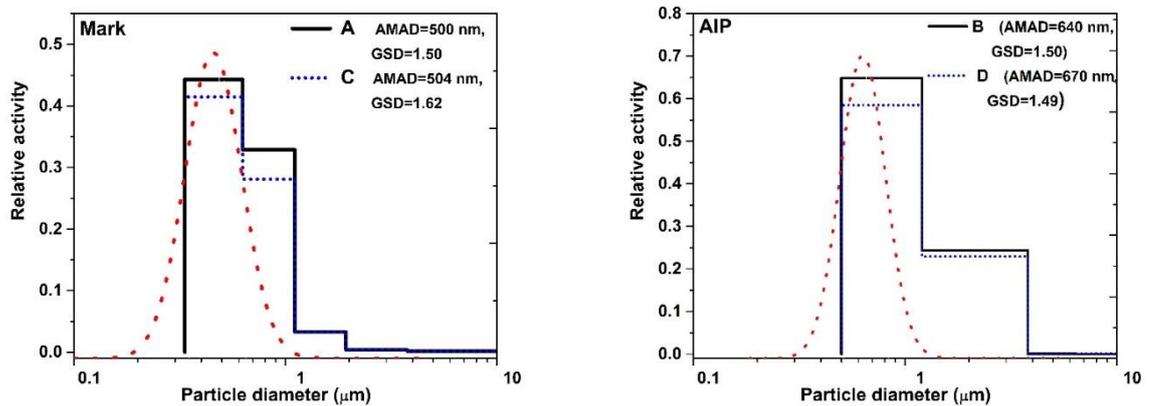


Рисунок 6. Распределение активности по размерам после поступления аэрозольных частиц. Сплошные линии – распределение активности на каскадах, пунктир – рассчитанное логнормальное распределение (кривые А, В, С, D соответствуют времени 15, 60, 80 и 120 минут после поступления аэрозоля).

Рассмотрено влияние концентрации аэрозольных частиц на параметры короткоживущих продуктов распада радона, такие как объемная активность, коэффициент равновесия, неприсоединенная фракция, скорость присоединения и сдвиг равновесия в цепочке короткоживущих продуктов распада радона. Соотношение активностей $^{218}\text{Po}:^{214}\text{Pb}:^{214}\text{Bi}$ для неприсоединенных и присоединенных продуктов распада радона исследовано при различных концентрациях аэрозольных частиц (табл. 3).

Таблица 3
Сдвиг равновесия в цепочке короткоживущих ДПР радона ^{218}Po : ^{214}Pb : ^{214}Bi в зависимости от концентрации аэрозольных частиц.

№	Время, ч	NC*, см ⁻³	ЭРОА Rn, Бк/м ³	АМТД = 1 нм			Присоединенная фракция			Сумма		
				^{218}Po	^{214}Pb	^{214}Bi	^{218}Po	^{214}Pb	^{214}Bi	^{218}Po	^{214}Pb	^{214}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

Проведено экспериментальное исследование радиометрической эффективности трех типов аналитических фильтров. Были исследованы две промышленные версии (старая и новая) аналитических фильтров АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20, различающихся по времени и способу производства, и новый тип фильтра АФА-РМВ-20.

Эксперименты показали, что для всех исследуемых фильтров пакет из трех фильтров обеспечивает улавливание практически 100 %-ов активности.

На рис. 7 и 8 показано влияние скорости фильтрации воздуха при различных концентрациях аэрозоля на радиометрическую эффективность фильтров АФА-РСП-20 и АФА-РМП-20. 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.

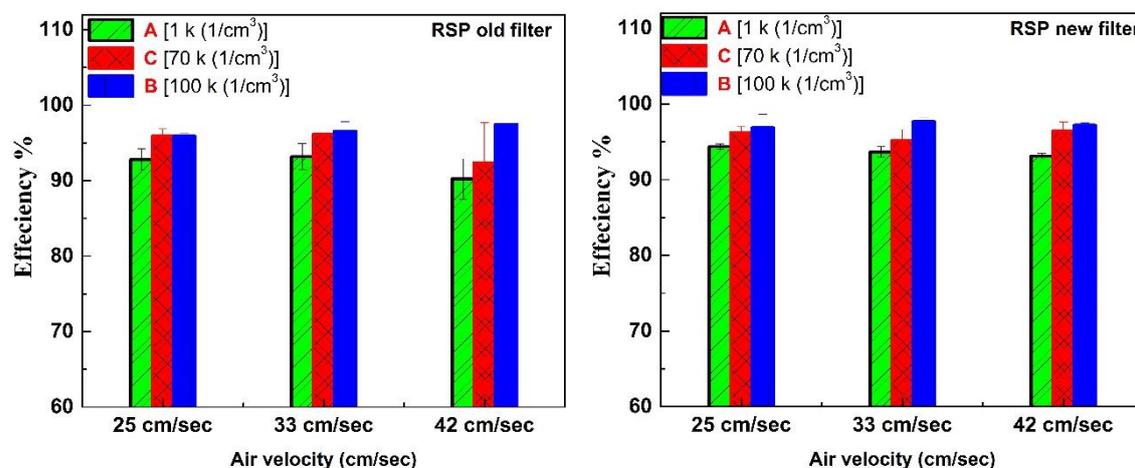


Рис. 7. Эффективность фильтров АФА-РСП старого и нового типа в зависимости от концентрации аэрозолей и скорости фильтрации.

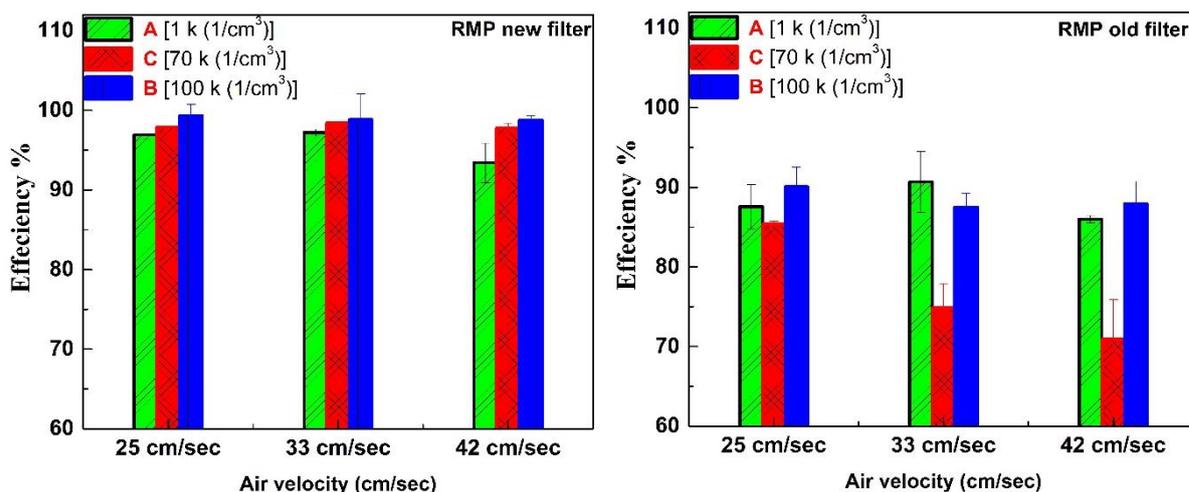


Рис. 8. Эффективность фильтров АФА-РМП старого и нового типа в зависимости от концентрации аэрозолей и скорости фильтрации

Наблюдался нелинейный характер зависимости эффективности фильтров АФА-РМП старого типа, который объясняется ослаблением эффекта электростатического улавливания ДПР радона фильтрами старого типа.

Эффективность фильтра АФА-РМВ практически постоянна – 99,85 % при различной скорости фильтрации воздуха и при различной концентрации аэрозольных частиц.

Функция пропускания аналитических аэрозольных фильтров оценивалась путем сопоставления размерного распределения радиоактивных аэрозолей до и после прохождения через фильтр. Фильтры АФА-РМВ-20 в силу их высокой эффективности были исключены из рассмотрения.

Распределение аэрозоля по размерам в диапазоне, проводимом с помощью диффузионной батареи, до и после прохождения через фильтр АФА-РСП, соответственно, показано на рис. 9.

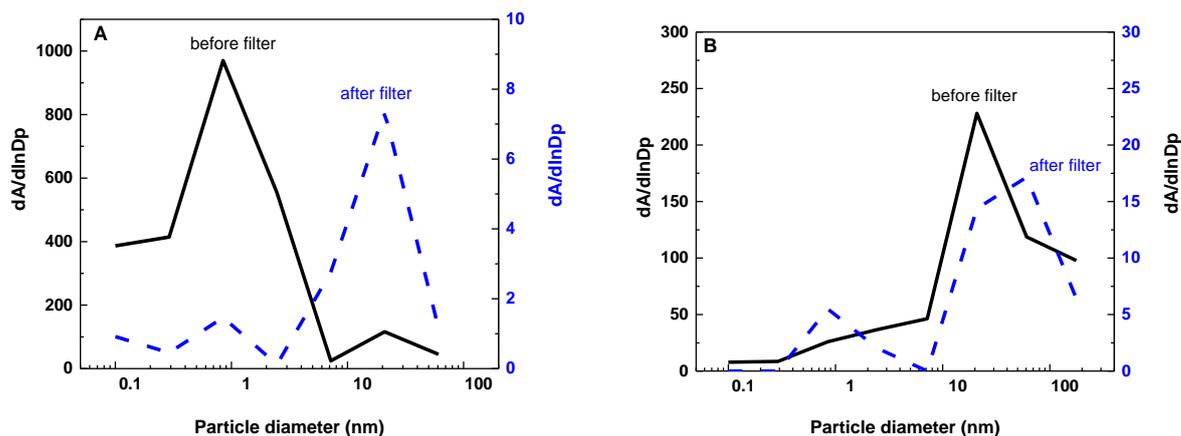


Рис. 9. Распределение активности по размеру до и после прохождения фильтра АФА-РСП, измеренное с использованием диффузионной батареи (А – чистый радоновый бокс; В – при высокой концентрации аэрозоля). Левая ось ординат соответствует измерениям перед фильтром, правая ось ординат – измерениям после фильтра

Параметры распределения (АМАД и СГО) среднедисперсных радиоактивных аэрозолей в исходной атмосфере и атмосфере после прохождения

фильтра АФА-РСП по результатам измерений, выполненных при помощи каскадного импактора АИП-2 представлены в табл. 4.

Таблица 4

Размерное распределение среднedisперсных радиоактивных аэрозолей в открытой атмосфере и после прохождения фильтра АФА-РСП

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

Результаты измерений для фильтров АФА-РМП старого и нового типа представлены на рис. 10 и 11. 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 увеличивается, что может быть следствием нейтрализации электростатического заряда на волокнах фильтров во время их длительного хранения.

Параметры размерного распределения для фильтров АФА-РМП нового и старого типа, представлены в табл. 5. 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.

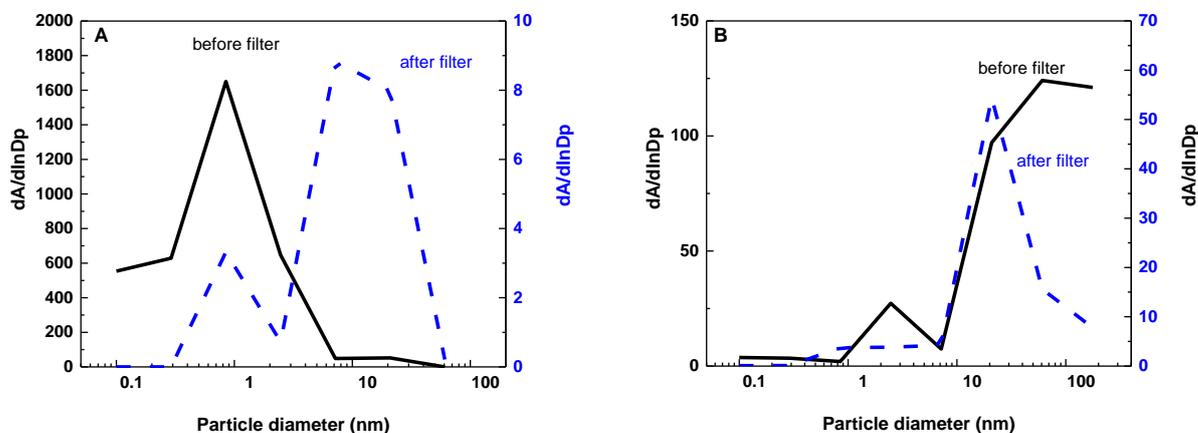


Рис. 10. Распределение активности по размеру до и после прохождения фильтра АФА-РМП нового типа, измеренное с использованием диффузионной батареи (А – чистый радоновый бокс; В – при высокой концентрации аэрозоля). Левая ось ординат соответствует измерениям перед фильтром, правая ось ординат – измерениям после фильтра.

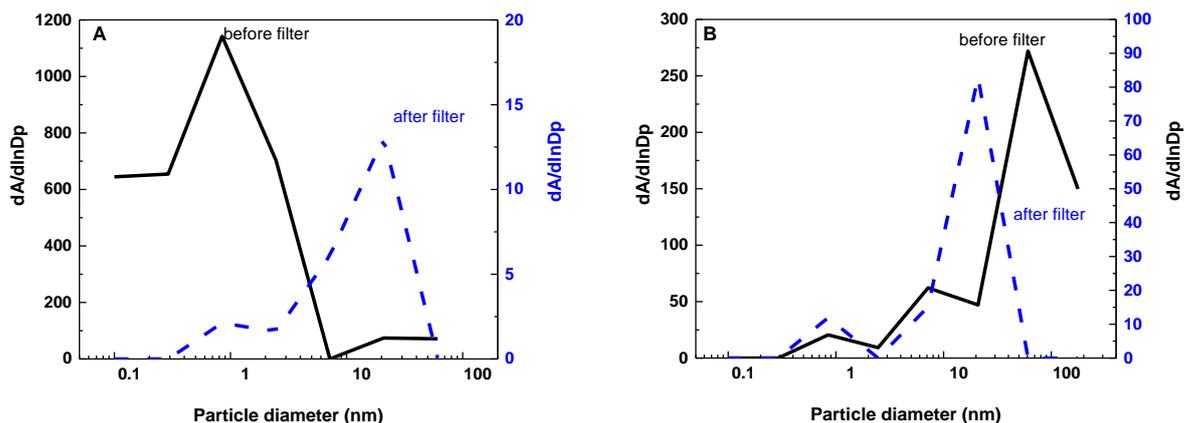


Рис. 11. Распределение активности по размеру до и после прохождения фильтра АФА-РМП старого типа, измеренное с использованием диффузионной батареи

Таблица 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

Частицы, относящиеся к моде Айткена (АМТД ~ 20 нм), обладают более высокой проницаемостью, чем неприсоединенные продукты распада, что необходимо учитывать при измерении аэрозолей, содержащих ДПР радона. При высокой концентрации аэрозольных частиц фильтр АФА-РСИ-20 более эффективен для частиц с АМТД ~ 20 нм, чем фильтр АФА-РМП-20.

Был поставлен эксперимент по определению функции проницаемости данных фильтров для широкого спектра аэрозольных частиц. С помощью было измерено числовое размерное распределение аэрозолей в окружающем воздухе до и после аэрозольных фильтров и оценена проницаемость для двух типов аэрозольных фильтров АФА-РСИ-20 и АФА-РМП-20 нового типа. В дальнейшем эти результаты были использованы при определении размерного распределения аэрозолей методом многослойных фильтров.

Полученные в главе 4 данные позволили 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.

В главе 5 рассмотрена конструкция универсального устройства для определения размерного распределения радиоактивных аэрозолей. Показана возможность разработки устройства, позволяющего одновременно определять размерное распределение радиоактивных аэрозолей во всем диапазоне респираторной фракции от 0,5 нм до 20 мкм. Разработана система отбора проб, состоящая из 12-

ступенчатой диффузионной батарее, пятиступенчатого каскадного импактора и набора из трех аналитических аэрозольных фильтров с установленными функциями проницаемости для измерения распределения радиоактивного аэрозоля по размерам продуктов распада радона (рис 12).

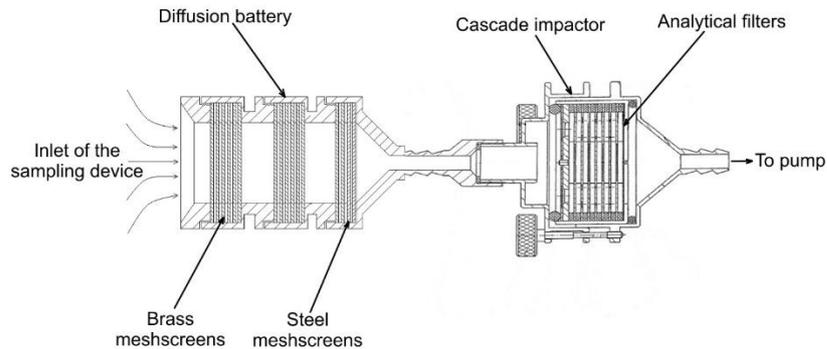


Рис. 13. Универсальная система для измерения размерного распределения радиоактивных аэрозолей в диапазоне от 0,5 нм до 20 мкм

Работоспособность разработанной системы отбора проб была проверена в серии экспериментов при низких и высоких концентрациях аэрозоля (рис. 13).

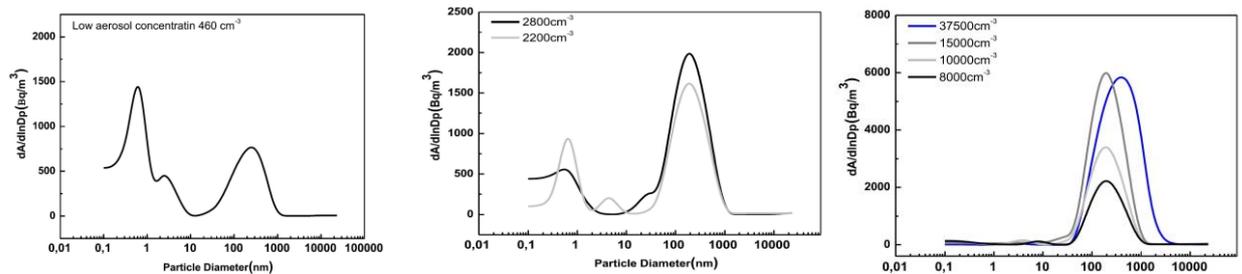


Рис. 13. Распределение активности по размерам при различной концентрации аэрозольных частиц

При низкой концентрации аэрозоля ($NC = 460 \text{ см}^{-3}$) основной модой является неприсоединенная фракция с АМТД $\sim 1 \text{ нм}$. Фильтрующий пакет АФА-РСП демонстрирует наличие моды 200–300 нм (СГ = 230 нм, СГО = 1,4) с общей активностью 25 %. При концентрации $NC \sim 2000\text{--}3000 \text{ см}^{-3}$ регистрируются неприсоединенные ДПР радона. При этом на каскадном импакторе не наблюдается практически никакой активности. Доля неприсоединенной фракции составляет от 0,3 до 0,4. Активность, осевшая на фильтрах, имеет АМАД $\sim 200 \text{ нм}$ с СГО = 1,4.

При высокой концентрации аэрозольных частиц неприсоединенные продукты распада радона практически отсутствуют (активность на диффузионной батарее около 1 %). 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. Активности на импакторе и пакете фильтров были сопоставимы по величине.

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.

Основные результаты работы

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 ~ 20 нм) и начальному участку моды аккумуляции обладают существенно более высокой проницаемостью, чем неприсоединенные продукты распада радона (АМТД ~ 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 $4 \cdot 10^4 \cdot \text{см}^{-3}$.

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 ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК и Аттестационным советом УрФУ:

1. **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. 0,8 п.л. / 0,6 п.л. (Web of Science, Scopus).

2. **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. 0,8 п.л. / 0,5 п.л. (Web of Science, Scopus).

3. **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. 0,8 п.л. / 0,4 п.л. (Web of Science, Scopus).

4. **Khalaf, H. N. B.** Effect of electronic cigarette (EC) aerosols on particle size distribution in indoor air and in a radon chamber / H. N. B. Khalaf, M.Y.A. Mostafa, M. Zhukovsky // *Nukleonika.* – 2019. – 64, 31–38. 0,9 п.л. / 0,6 п.л. (Web of Science, Scopus).

5. **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. 0,9 п.л. / 0,5 п.л. (Web of Science, Scopus).

6. 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. 0,9 п.л. / 0,4 п.л. (Web of Science, Scopus).

7. **Khalaf, H. N. B.** Radioactive and non-radioactive aerosol permeability through two types of analytical filters / H. N. B. Khalaf, M.Y.A. Mostafa, M. Zhukovsky // *Journal of Physics: Conference Series.* – 2019. – 1353, 012080. 0,6 п.л. / 0,3 п.л. (Scopus).

8. **Khalaf, H. N. B.** Radioactive efficiency and aerosol permeability of AFA-RSP-20 analytical filter/ H. N. B. Khalaf, M.Y.A. Mostafa, M. Zhukovsky // *AIP Conference Proceedings.* – 2019. – 2174, Paper 020029. 0,6 п.л. / 0,4 п.л. (Scopus).

9. Mostafa, M.Y.A., **Khalaf, H.N.B.**, Zhukovsky, M., Infection of aerosol concentration on the radon decay products fractions // *Journal of Physics: Conference Series.* – 2019. – 1410. 0,7 п.л. / 0,4 п.л. (Web of Science, Scopus).

Публикации в других научных изданиях

10. **Nazmy, H.**, Mostafa, M.Y.A., Zhukovsky, M., Particle Size Distribution of E-Cigarette Aerosols in Indoor Air. // *Journal of Radiation and Nuclear Applications An International Journal.* – 2018. –V. 3. – P. 111–117. 0,9 п.л. / 0,5 п.л.