

ЭКСПРЕСС-КОНТРОЛЬ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ**Б. И. Огородников^{1,2}, А. К. Будыка², Н. И. Павлюченко¹**¹ *Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль*² *ГНЦ РФ «Физико-химический институт им. Л. Я. Карпова», Москва*

Рассмотрены механизмы улавливания аэрозолей в волокнистых фильтрующих материалах. Показано, что при линейных скоростях потока около 1 м/с осаждение аэрозолей с аэродинамическими диаметрами более 1 мкм происходит преимущественно за счет инерционного захвата, а диаметрами 0,1 – 0,4 мкм - за счет захвата касанием. Это позволяет обогащать осадок частицами микронных размеров. При исследованиях дисперсного состава аэрозолей в объекте «Укрытие», проведенных в 2003 - 2005 гг., получены данные об эффективности улавливания материалом ФПП-70-0,1 аэрозолей-носителей радионуклидов чернобыльского генезиса и дочерних продуктов радона и торона. Предложено использовать материал ФПП-70-0,1 для экспресс-контроля техногенных радиоактивных аэрозолей.

Для обеспечения радиационной безопасности желательно вести оперативный контроль за аэрозолями в режимах non stop и on line. На практике выдача результатов задерживается из-за необходимости накопления аэрозолей в пробозаборном устройстве (в частности, на фильтре) и выдержки пробы с целью уменьшения количества радионуклидов, излучения которых мешают измерению полезных сигналов. С первой проблемой частично справляются, используя высокопроизводительные аспираторы, фильтры различной площади и развертки. Для решения второй выбор средств ограничен, особенно когда негативными компонентами являются дочерние продукты радона и торона (ДПР).

Известно [1, 2], что на предприятиях атомной отрасли радиоактивные аэрозоли имеют широкий диапазон размеров, который характеризуется, как правило, активностным медианным аэродинамическим диаметром (АМАД). В публикации [2] обработаны 160 измерений АМАД радиоактивных аэрозолей при проведении всевозможных процессов: в урановых рудниках, хранилищах ОЯТ, на обогатительных фабриках, заводах по изготовлению твэлов и смешанного уран-плутониевого топлива, АЭС, исследовательских реакторах, радиохимических заводах, установках по переработке и хранению РАО и т.д. Обобщение измерений привело к медианному значению АМАД = 4,4 мкм, в частном случае для атомной энергетики и заводов ядерного топлива АМАД = 4 мкм [2, 3]. В соответствии с этими результатами и зависимостью дозовых коэффициентов от АМАД в публикации [4] рекомендовано на рабочих местах, когда истинное распределение не известно, использовать значение АМАД = 5 мкм. Однако во многих случаях были зафиксированы аэрозоли с АМАД как менее 1 мкм, так и более 10 мкм.

Проведены также всесторонние исследования дисперсного состава аэрозолей-носителей ДПР [5]. Многолетние систематические наблюдения за аэрозолями в окрестностях ЧАЭС показали, что ДПР, как правило, ассоциированы с частицами, АМАД которых находится в диапазоне 0,1 – 0,4 мкм [6]. К такому же выводу привели исследования радиоактивных аэрозолей в декабре 2000 г. внутри объекта «Укрытие» в помещении 207/5, откуда 10 годами ранее при поиске топливосодержащих материалов были пройдены многочисленные буровые скважины в подреакторное пространство [7]. Обработка около 100 измерений дисперсного состава аэрозолей-носителей ДПР, поступающих через «Байпас» из бывшего центрального зала 4-го энергоблока в высотную вентиляционную трубу ВТ-2, показала, что за период с сентября 2003 г. по декабрь 2004 г. среднее значение АМАД составляло 0,15 мкм [8].

Исходя из различий дисперсного состава аэрозолей-носителей техногенных искусственных радионуклидов и продуктов распада естественных благородных радиоактивных га-

зов, их сепарация возможна в импакторах [9]. Однако изготовление и калибровка таких приборов – сложная задача. Если же требуется прокачка больших объемов воздуха с целью определения аэрозолей с низкой концентрацией, что повсеместно встречается в практике обеспечения радиационной безопасности, то такие импакторы становятся еще громоздкими и энергоемкими. Реализация импакторного принципа изложена в публикациях [10, 11], причем макеты виртуальных импакторов и различных комбинаций фильтрующих материалов Петрянова были опробованы в 2001 – 2004 гг. внутри объекта «Укрытие».

Однако имеется другой путь решения проблемы.

Исследования закономерностей улавливания аэрозолей в волокнистых фильтрующих материалах, выполненные в Физико-химическом институте им. Л. Я. Карпова (Москва) в 60 – 80-е годы с помощью монодисперсных аэрозолей [11, 12], позволили не только разработать метод определения дисперсного состава атмосферной пыли [14], но и создать основы сепарации частиц по размерам.

Метод [14] базируется на закономерностях улавливания аэрозолей волокнистыми структурами, когда основным механизмом захвата частиц является инерционный [15]. При числах Стокса (Stk) $\sim 0,5 - 1$ он преобладает над прочими механизмами улавливания частиц, в частности диффузией и зацеплением. При скоростях фильтрации свыше $0,5$ м/с вклад электростатических сил в механизм захвата аэрозолей также пренебрежимо мал [13]. Закономерности инерционного улавливания частиц волокнистыми фильтрами исследованы в [15]. Установлено, что эффективность фильтрующего материала с диаметром волокон $5 - 7$ мкм при $Stk > 0,5$ пропорциональна квадрату аэродинамического диаметра частицы. Исходя из этого, при реализации метода [14] были использованы трехслойные пакеты, состоящие из материалов ФПП-70 или ФПА-70, ФПП-15-1,5 или АФА РМП-20. Выявленные в работе [15] закономерности привели к заключению, что фильтрация воздуха, содержащего техногенные аэрозоли с АМАД около 5 мкм, которые приняты в [4] в качестве референтных, и естественные ДПР с АМАД $= 0,15$ мкм, приведет к их существенной сепарации, если пропустить поток при скорости около 1 м/с через фильтрующий материал ФПП-70-0,1 или ФПА-70-0,1. При этом частицы с АМАД $= 5$ мкм будут оседать на волокнах за счет инерционного захвата, а частицы с АМАД $= 0,15$ мкм – преимущественно за счет механизма зацепления.

Экспериментальная проверка сепарации радиоактивных аэрозолей объекта «Укрытие» была выполнена в «Байпасе» в процессе исследования их дисперсного состава в воздухе, поступавшем из центрального зала. Пробы отбирали на пакеты трехслойных фильтрующих материалов Петрянова с помощью автономной воздуходувки Н 810. Пакет состоял из фильтров ФПП-70-0,1, ФПА-70-0,16 и АФА РМП-20 [13]. Воздух прокачивали около 2 ч при скорости $0,6 - 1,2$ м/с. В каждом пробоотборе скорость выдерживали постоянной. Изокинетичность отбора аэрозолей обеспечивали конусной насадкой длиной 140 мм и входным диаметром 25 мм. Она располагалась перед пакетом навстречу вентиляционному потоку, скорость которого составляла $3 - 5$ м/с.

Через $15 - 20$ мин после окончания прокачки воздуха пакет разделяли на три исходных слоя и начинали измерять их β -активность на радиометре КРК-1, последовательно меняя фильтры через 120 с. Для каждого слоя получали кривую спада активности на протяжении одного - полутора часов, что позволяло через $4 - 5$ сут при повторном измерении определить $\Sigma\beta$ -активность как долгоживущих (преимущественно $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}, ^{137}\text{Cs}, ^{241}\text{Pu}$), так и короткоживущих (дочерние продукты радона и торона) нуклидов. Идентификацию радионуклидов выполняли на сцинтилляционном и полупроводниковом γ -спектрометрах.

Анализ около 80 проб, отобранных с сентября 2003 г. по декабрь 2004 г. [8], показал, что почти в 70% случаев АМАД носителей радионуклидов чернобыльского генезиса находился в диапазоне $1,7 - 8,5$ мкм при среднем значении $3,8$ мкм, что совпадало с данными обзора [2], а дочерних продуктов радона и торона – от $0,03$ до $0,3$ мкм при среднем значении $0,15$ мкм, что коррелировало с данными публикации [5].

По результатам работы [8] и измерений, проведенных в январе – марте 2005 г., была определена эффективность улавливания аэрозолей фильтром ФПП-70-0,1 (т.е. лобовым слоем пакета), принимая за 100 % активность всего пакета. Как следует из рис. 1, среди 100 проб, отобранных в «Байпасе», наиболее часто эффективность улавливания ДПР ($\text{Э}_{\text{ДПР}}$) составляла 10 - 20 %, а аэрозолей-носителей «чернобыльских» радионуклидов ($\text{Э}_{\text{ОУ}}$) – 85 – 100 %. Таким образом, натурные эксперименты подтвердили, что с помощью специального фильтра и режима прокачки воздуха можно существенно уменьшить поступление на фильтр аэрозолей-носителей ДПР при сохранении или незначительном снижении поступления техногенных радиоактивных аэрозолей.

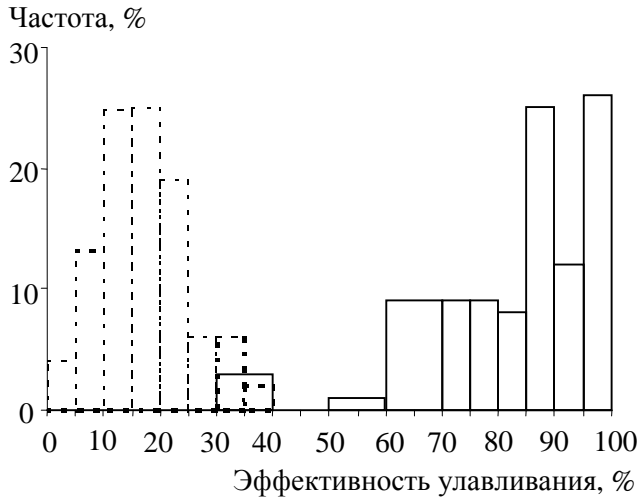


Рис. 1. Частота распределения эффективностей улавливания фильтром ФПП-70-0,1 аэрозолей-носителей дочерних продуктов радона и торона (пунктирная линия) и $\Sigma\beta$ -активных радионуклидов чернобыльского генезиса (сплошная линия).

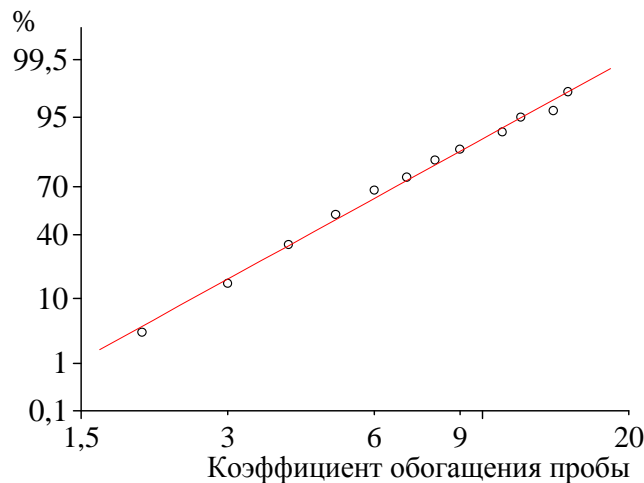


Рис. 2. Кумулятивное распределение (%) коэффициентов обогащения аэрозолей проб, уловленных фильтром ФПП-70-0,1 при исследованиях в «Байпасе» в 2003 – 2005 гг.

Как было отмечено выше, величины АМАД в разные периоды исследований могли отличаться от среднего значения в два - три раза.

Чтобы получить степень истинного обогащения осадка на фильтре ФПП-70-0,1 аэрозолями-носителями радионуклидов чернобыльского генезиса, для каждого пробоотбора в «Байпасе» было рассчитано отношение $K = \text{Э}_{\text{ОУ}}/\text{Э}_{\text{ДПР}}$. Полученные результаты представлены

Помимо исследований в «Байпасе» в октябре 2004 г. проба аэрозолей на пакет фильтров была взята в коридоре 2001 объекта «Укрытие» на высотной отметке +43 м. При скорости потока 0,94 м/с на фильтре ФПП-70-0,11 было уловлено 20,1 % аэрозолей-носителей ДПР и 85,4 % аэрозолей-носителей «чернобыльских» радионуклидов. АМАД первых составлял 0,2 мкм, вторых – 8,5 мкм. Через месяц пакет трехслойных фильтров был использован в помещении 207/4 для контроля радиационной обстановки при замене нейтронного датчика в скважине 3.10.Г [16]. Анализ показал, что при скорости потока 1,23 м/с на фильтре ФПП-70-0,1 было уловлено 18,3 % аэрозолей-носителей ДПР и 80 % аэрозолей-носителей «чернобыльских» радионуклидов. АМАД первых составлял 0,18 мкм, вторых – 5,3 мкм. Таким образом, закономерности фильтрации, выявленные при исследовании аэрозолей поступавших из центрального зала в «Байпас» (рис. 1), подтвердились и для других помещений объекта «Укрытие».

Из рис. 1 видно, что имеется значительный разброс эффективностей улавливания как естественных, так и искусственных радиоактивных аэрозолей. Во-первых, это связано с изменением от опыта к опыту линейных скоростей фильтрации. Во-вторых, хотя все фильтры перед комплектацией пакетов калибровали по стандартному сопротивлению, по техническим требованиям допускался разброс $\pm 10\%$. Однако в наибольшей мере эффективность зависела от дисперсного состава аэрозолей, находившихся в воздухе в процессе отбора пробы.

в логарифмически-вероятностной координатной сетке. Как видно из рис. 2, 50 %-ный интервал пришелся на $K = 5$. Для 70 % проб коэффициент обогащения находился в диапазоне от 3 до 8. Низкие обогащения (в два раза и менее) были зафиксированы только в 3 % проб. Для проб, отобранных в коридоре 2001 и помещении 207/4, получены величины $K \sim 4,3$. Таким образом, несмотря на разнообразие техногенной деятельности в помещениях объекта «Укрытие» и изменчивость параметров воздушной среды (температура, относительная влажность, направление и скорость потоков и т.д.) осадок на фильтре ФПП-70-0,1 был всегда обогащен аэрозолями-носителями радионуклидов чернобыльского генезиса.

Теперь обратимся к практической реализации возможности сепарирования аэрозоль-носителей ДПР и продуктов чернобыльской аварии с помощью фильтров ФПП-70-0,1.

Обогащение осадка на фильтре будет способствовать осуществлению экспресс-контроля только в том случае, если активность уловленных ДПР (даже при эффективности 10 – 20 %) окажется существенно ниже активности аэрозолей-носителей радионуклидов чернобыльского генезиса или аэрозолей иного происхождения, если метод будет использован на других предприятиях или АЭС.

К сожалению, за 18 лет существования объекта «Укрытие» радоновой съемки в его помещениях не проводили. А тем не менее огромная масса сооружений, особенно бетонных конструкций, отсутствие принудительной вентиляции позволяют предполагать, что концентрации радона и торона могут быть значительными. Ряд проб, отобранных в декабре 2000 г. в помещении 207/5, показал, что концентрации ДПР здесь были на порядок величины выше, чем в окрестностях ЧАЭС [7]. Систематические пробоотборы в «Байпасе», выполненные в 2003 – 2004 гг., привели к заключению, что концентрации ДПР в воздухе центрального зала находятся, как правило, в диапазоне 3 – 20 Бк/м³. Содержание ДПР в воздухе оказалось индифферентно к сеансам пылеподавления, проводимым путем распыления растворов через форсунки, расположенные под кровлей объекта «Укрытие», не был выявлен и сезонный ход концентраций ДПР [16].

В отличие от ДПР концентрации аэрозолей-носителей радионуклидов чернобыльского генезиса изменялись в очень широком диапазоне. По результатам работы [16] их $\Sigma\beta$ -активность в центральном зале колебалась от 0,1 до 160 Бк/м³. Однако с позиций контроля радиационной обстановки внимание должны привлекать лишь ситуации, в которых могут быть превышены контрольные концентрации. В соответствии с [17] в объекте «Укрытие» установлена контрольная концентрация $\Sigma\beta = 3$ Бк/м³ для помещений постоянного пребывания персонала и 8,9 Бк/м³ для помещений периодического пребывания.

Таким образом, если концентрации ДПР в помещениях объекта «Укрытие» будут находиться на уровне показателей центрального зала 3 – 20 Бк/м³, то с помощью фильтра ФПП-70-0,1 можно экспрессно отслеживать ситуации, в которых $\Sigma\beta$ превышает контрольные концентрации.

Использование фильтра ФПП-70-0,1 для экспресс-анализа может проводиться в двух вариантах: 1) им можно заменить аналитические фильтры АФА РМП или АФА РСР, 2) его можно наложить на фильтры АФА РМП или АФА РСР. Во втором случае сразу после окончания пробоотбора фильтр ФПП-70-0,1 может быть измерен с целью экспресс-контроля, а затем вместе с фильтром АФА РМП или АФА РСР измерен повторно для расчетов полных концентраций как $\Sigma\beta$ -, так и $\Sigma\alpha$ -активности, поскольку пакет из двух фильтров практически на 100 % уловит все аэрозоли.

В заключение следует отметить, что в предлагаемом методе экспресс-контроля радиоактивных аэрозолей используются регламентные средства прокачки воздуха и измерения фильтров.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Task Group on Lung Dynamics. Deposition and Retention for Internal Dosimetry of Human Respiratory Tract // Health Phys. – 1966. – Vol. 12. – P. 173 – 207.

2. *Dorrian M.-D., Bailey M.R.* Particle Size Distributions of Radioactive Aerosols Measured in Workplaces // *Radiat. Prot. Dosim.* – 1995. – Vol. 60, No. 2. – P. 119 – 133.
3. *Огородников Б.И.* Дисперсность радиоактивных аэрозолей на рабочих местах // *Атомная техника за рубежом.* – 2000, № 11. – С. 12 – 20.
4. *International Commission on Radiological Protection.* Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. – ICRP Publication 66 (Oxford: Pergamon Press) // *Ann. ICRP* 24 (1 – 3), 1994.
5. *Огородников Б.И.* Свойства, поведение и мониторинг радона и торона и их дочерних продуктов в воздухе // *Атомная техника за рубежом.* – 2001. - № 3. – С. 14 – 25.
6. *Огородников Б.И., Скитович В.И., Будыка А.К.* Отличия в дисперсном составе продуктов аварии IV блока, дочерних продуктов радона и торона, космогенного бериллия-7 в 30-км зоне ЧАЭС с позиций механики аэрозолей // *Тез. докл. Междунар. конф. “Чернобыль-96”.* – Киев, 1996. – С. 130 – 131.
7. *Огородников Б.И., Будыка А.К.* Мониторинг радиоактивных аэрозолей в объекте «Укрытие» // *Атомная энергия,* - 2001. – Т. 91, вып. 6. – С.- 471 – 475.
8. *Огородников Б.И., Павлюченко Н.И., Будыка А.К., Краснов В.А.* Пылеобразование в объекте «Укрытие» под воздействием техногенных и природных факторов // *Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля.* – 2005. – Вип. 3 (в печати).
9. *Фукус Н.А.* Механика аэрозолей. – М.: Изд-во АН СССР, 1955. – 352 с.
10. *Меленевский А.Э.* Экспрессное измерение концентраций и дисперсного состава радиоактивных аэрозолей объекта «Укрытие» // *Проблемы Чернобиля.* – 2002. - Вип. 11. – С. 102 – 110.
11. *Меленевский А.Э., Кравчук Т.А., Бадковский В.П. и др.* Создание прибора для мониторинга доз ингаляционного облучения в условиях объекта «Укрытие» с учетом субмикронных аэрозолей // *Там же.* – 2003. - Вип. 12. – С. 162 – 170.
12. *Ушакова Е.Н., Козлов В.И., Петрянов И.В.* К вопросу о гидродинамических и фильтрующих свойствах фильтрующих материалов Петрянова // *Докл. АН СССР.* - 1972. – Т. 206, - № 4. – С. 916 – 919.
13. *Петрянов И.В., Козлов В.И., Басманов П.И., Огородников Б.И.* Волокнистые фильтрующие материалы ФП. - М.: Знание, 1968.
14. *Вудыка А.К., Ogorodnikov B.I., Skitovich V.I.* Filter pack technique for determination of aerosol particle size // *J. Aerosol Sci.* - 1993. – Vol. 24, - Suppl. 1. – P. S205 – S206.
15. *Будыка А.К., Огородников Б.И., Скитович В.И., Петрянов И.В.* Гидродинамика веерной модели волокнистого фильтра и захват аэрозолей при числах Стокса от 0.4 до 4 // *Докл. АН СССР.* - 1985. – Т. 284, № 5. – С. 1160 – 1163.
16. *Огородников Б.И., Звеницкий М.И., Дубас В.Н.* Аэрозольная обстановка при замене в скважине 3.10.Г объекта «Укрытие» блока детектирования состояния топливосодержащих материалов в ноябре 2004 г. // *Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля.* – 2005. – Вип. 2. (см. настоящий выпуск).
17. *Контрольные уровни радиационной безопасности на ОУ, КУРБ-ОУ-2002 / ГСП “Чернобыльская АЭС”.* Объект «Укрытие». – Славутич, 2002.

Поступила в редакцию 06.04.05,
после доработки 12.04.05.

2 20 **ЕКСПРЕС-КОНТРОЛЬ ТЕХНОГЕННИХ РАДІОАКТИВНИХ АЕРОЗОЛЕЙ**

Б. І. Огородников, О. К. Будика, М. І. Павлюченко

Розглянуто механізми уловлювання аерозолей у волокнистих фільтруючих матеріалах. Показано, що при лінійних швидкостях потоку близько 1 м/с осадження аерозолей з аеродинамічними діаметрами більш 1 мкм відбувається переважно за рахунок інерційного захоплення, а діаметрами 0,1 – 0,4 мкм – за рахунок захоплення торканням. Це дозволяє збагачувати осад частинками мікронних розмірів. При дослідженнях дисперсного складу аерозолей в об'єкті «Укриття», проведених у 2003 – 2005 рр., отримано дані про ефективність уловлювання матеріалом ФПП-70-0,1 аерозолей-носіїв радіонуклідів чорнобильського генезису та дочірніх продуктів радону й торону. Запропоновано використовувати матеріал ФПП-70-0,1 для експрес-контролю техногенних радіоактивних аерозолей.

2 20 **EXPRESS-CONTROL OF MAN-CAUSED RADIOACTIVE AEROSOLS**

B. I. Ogorodnikov, A. K. Budyka, N. I. Pavlyuchenko

The mechanisms of aerosol recovery in fibrous filter materials were examined. It was achieved that during the linear speeds of flow of about 1 m/s the sedimentation of aerosols with aerodynamic diameters of more than 1 μm occurs mainly at the expense of inertial capture, and with diameters of 0.1 – 0.4 μm – at the expense of contact capture. It allows to enrich the residue with particles of micron sizes. During the investigations of size distribution of aerosols in Object “Ukrytya” conducted in 2003 – 2005, the data on recovery efficiency of aerosol-carriers of Chernobyl genesis radionuclides and daughter products of radon and thoron were obtained using the material ФПП-70-0,1. It was proposed to use the material ФПП-70-0,1 for express-control of man-caused radioactive aerosols.