

**ОБРАЗОВАНИЕ АЭРОЗОЛЕЙ-НОСИТЕЛЕЙ <sup>137</sup>Cs И <sup>90</sup>Sr ПРИ СВАРКЕ РАДИОАКТИВНО ЗАГРЯЗНЕННЫХ МЕТАЛЛОКОНСТРУКЦИЙ**

Представлены результаты исследования влияния основных параметров процесса сварки на закономерности перехода радионуклидов <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr в сварочный аэрозоль. Удельная активность <sup>137</sup>Cs в сварочном аэрозоле убывает по степенному закону с уменьшением поверхностной активности наплаваемых пластин, зависит от состава покрытия электродов и не зависит от погонной энергии сварки. Активность респираторной фракции сварочного аэрозоля превышает на 20 – 30 % активность сварочного аэрозоля в целом.

*Ключевые слова:* сварочные аэрозоли, респираторная фракция, активность радионуклидов <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, объект «Укрытие».

**Введение**

Опыт эксплуатации объекта «Укрытие» ЧАЭС показывает, что хотя поступление радиоактивных аэродисперсных частиц в окружающую среду существенно уменьшилось и стало частично контролируемым, оно по-прежнему представляет большую радиологическую опасность [1]. Характерным примером загрязнения воздушных масс внутри и вне объекта «Укрытие» является образование радиоактивных аэрозолей в процессе проведения строительно-монтажных работ [1]. При возведении новых защитных барьеров и сооружений значительный объем работ приходится на резку и сварку металлоконструкций. В этой связи особый интерес представляют исследования закономерностей и механизма перехода радионуклидов с поверхности загрязненных металлоконструкций в сварочный аэрозоль. Очевидно, что для контроля радиационной обстановки при эксплуатации объекта «Укрытие», прогнозирования эффективности использования индивидуальных и коллективных средств защиты персонала важно также знать интенсивность эмиссии, дисперсность и химический состав твердой составляющей сварочного аэрозоля (ТССА) [2] (зависит от техники, режима и пространственного положения сварки; составов электродного покрытия, основного и присадочного металлов [3]).

В данной работе исследовано влияние основных параметров процесса сварки на закономерности перехода радионуклидов <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr в сварочный аэрозоль. Спустя 25 лет после аварии на 4-м энергоблоке ЧАЭС именно они определяют поверхностное загрязнение металлоконструкций бета-излучающими нуклидами в помещениях и локальной зоне объекта «Укрытие».

**Материалы и методика эксперимента**

Для исследований выбраны пластины низкоуглеродистой стали Ст3 размером 400 Ч 150 Ч 8 мм, на которые осуществляли одностороннюю наплавку электродами АНО-4 с рутиловым (TiO<sub>2</sub>) и УОНИ 13/45 с карбонатно-флюоритовым (CaCO<sub>3</sub>-CaF<sub>2</sub>) покрытиями. Эти электроды диаметром 4 мм применяются для сваривания низкоуглеродистых и низколегированных конструкционных сталей.

С целью имитации радиоактивного загрязнения металлоконструкций объекта «Укрытие» на поверхность каждой пластины путем накапывания был равномерно нанесен радиоактивный раствор. Использовали жидкие радиоактивные отходы (ЖРО) из водных скоплений в помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие» (помещения 012/7, 014/2). Эти ЖРО по действующей в настоящее время классификации относятся к категории среднеактивных и представляют собой щелочно-карбонатные растворы. Наибольший вклад в их активность вносят изотопы <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr. После высыхания ЖРО на поверхности пластин образовался

слой ржавчины. В табл. 1 представлены исходные величины поверхностной активности ( $A_n$ ) подготовленных для исследований пластин.

**Таблица 1. Исходная поверхностная активность пластин (Бк/см<sup>2</sup>), подготовленных для исследований**

№ пластины	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr
1	17	3,0
2	160	56
3	146	51
4	20	3,5
5	200	70
6	22	3,7
7	100	35

Наплавку на пластины проводили в шкафу объемом 0,7 м<sup>3</sup> (рис. 1, а) при двух значениях погонной энергии сварки  $E_i$  (электрическая энергия, расходуемая на единицу длины шва  $E_i = I \cdot U/v$ , где  $I \cdot U$  – мощность источника сварочного тока;  $v$  – скорость сварки): 0,8 кДж/мм ( $I = 110$  А,  $U = 24$  В,  $v = 3,3$  мм/с) и 1,3 кДж/мм ( $I = 200$  А,  $U = 33$  В,  $v = 5$  мм/с). Использовали постоянный ток обратной полярности. В сварочном шкафу на расстоянии 0,4 м от дуги располагался зонд, через который со скоростью 75 дм<sup>3</sup>/с забирали воздух с ТССА и по гофрированной трубе диаметром 0,1 м и длиной 3 м направляли в про-

боотборную камеру (см. рис. 1 б). Высота камеры 1,9 м, диаметр 0,19 м.



а

б

Рис. 1. Экспериментальная установка: а - сварочный шкаф с воздухозаборником; б - камера для отбора проб импакторами.

В измерительном сечении камеры с помощью анемометра ИС-1 был измерен профиль скоростей потока воздуха и выбраны точки для отбора проб со скоростью  $2,7 \pm 0,2$  м/с. Концентрация ТССА в трубе колебалась в диапазоне 50 ч 200 мг/м<sup>3</sup> в зависимости от режима сварки и марки электрода. Отбор проб ТССА и его респиральной фракции ТССА<sub>2,5</sub> (частиц с аэродинамическим диаметром менее 2,5 мкм, проникающих и осаждающихся в альвеолах легких) осуществляли в одинаковых условиях с помощью одноступенчатых импакторов низкого давления LPI 2,5/10 дм<sup>3</sup>/мин (Air Diagnostic and Engineering Inc. USA). У одного из импакторов были удалены сопло и разделительная пластина, предназначенная для улавливания частиц ТССА с аэродинамическим диаметром более 2,5 мкм. В результате на выходных фильтрах

импакторов (Teflon membrane filters, ТК15-G3М) из отобранного объема воздуха были уловлены фракция ТССА<sub>2,5</sub> и весь сварочный аэрозоль в целом (ТССА<sub>tot</sub>). Время отбора проб варьировалось в пределах 10 ч 60 с, а взвешивание фильтров до и после отбора проб проводили с точностью  $5 \cdot 10^{-6}$  г в одинаковых условиях (время кондиционирования не менее 48 ч,  $t = 20 \pm 1$  °С, влажность  $50 \pm 5$  %).

Определение содержания  $^{137}\text{Cs}$  в пробах выполняли на гамма-спектрометре с германиевым детектором GL2020, имеющим входное бериллиевое окно толщиной 0,5 мм и с энергетическим разрешением 1,6 кэВ для энергии гамма-квантов 1,33 МэВ  $^{60}\text{Co}$ . Минимальная определяемая активность  $^{137}\text{Cs}$  составила  $0,1 \pm 0,02$  Бк/проба. Обработка спектров проводилась по алгоритмам, заложенным в программе Geniu-2000. Содержание  $^{90}\text{Sr}$  определяли с помощью бета-спектрометра СЕБ-01 и низкофонового (фон  $0,03 \pm 0,01$  имп/с) альфа-, бета-счетчика “Tesla” NRR-610.

Для определения элементного состава проб использовали метод рентгенофлуоресцентной (XRF) спектрометрии. Концентрации (мкг/см<sup>2</sup>) для 40 элементов (от алюминия до свинца) были определены с помощью НЕР ED (high-energy polarized beam energy-dispersive) XRF спектрометре Epsilon-5 (PANanalytical, Almeo, The Netherlands) по методике, описанной в [4].

### Результаты экспериментов и их обсуждения

Результаты гамма-спектрометрических измерений проб ТССА<sub>2,5</sub> и ТССА<sub>tot</sub> представлены на рис. 2 и 3.

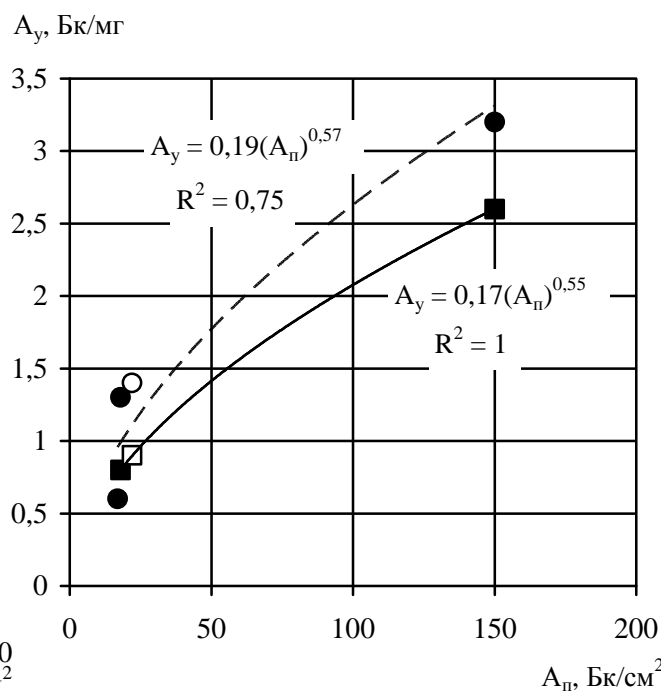
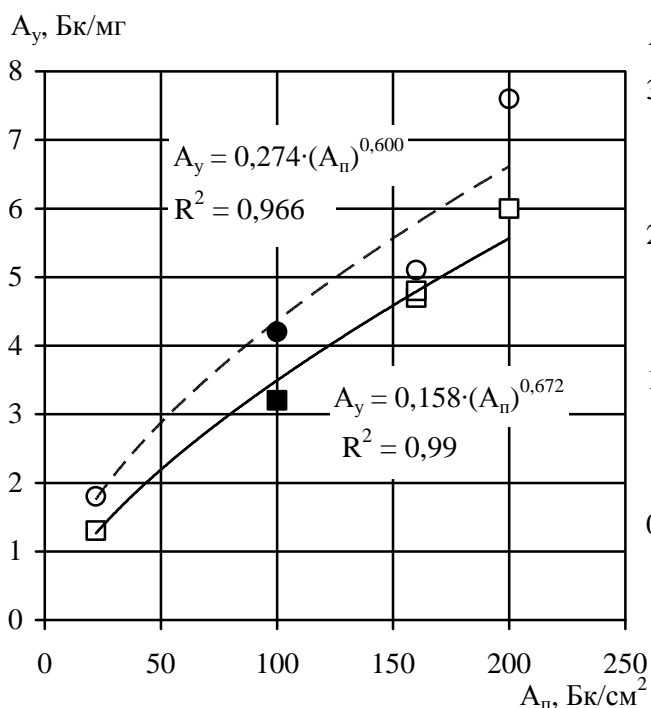


Рис. 2. Зависимость удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  ( $A_y$ ) в сварочном аэрозоле (ТССА<sub>tot</sub>) и в респирательной фракции ТССА<sub>2,5</sub> от поверхностной активности наплавляемых пластин  $^{137}\text{Cs}$  ( $A_n$ ) при сварке электродами АНО-4:  $E_i = 1,3$  кДж/мм: ○ – ТССА<sub>2,5</sub>; □ – ТССА<sub>tot</sub>;  $E_i = 0,8$  кДж/мм: ● – ТССА<sub>2,5</sub>; ■ – ТССА<sub>tot</sub>. Аппроксимации: - - - ТССА<sub>2,5</sub>; — ТССА<sub>tot</sub>.

Рис. 3. Зависимость удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  ( $A_y$ ) в сварочном аэрозоле (ТССА<sub>tot</sub>) и в респирательной фракции ТССА<sub>2,5</sub> от поверхностной активности наплавляемых пластин  $^{137}\text{Cs}$  ( $A_n$ ) при сварке электродами УОНИ 13/45:  $E_i = 1,3$  кДж/мм: ○ – ТССА<sub>2,5</sub>; □ – ТССА<sub>tot</sub>;  $E_i = 0,8$  кДж/мм: ● – ТССА<sub>2,5</sub>; ■ – ТССА<sub>tot</sub>. Аппроксимации: - - - ТССА<sub>2,5</sub>; — ТССА<sub>tot</sub>.

Как видно, удельная активность  $^{137}\text{Cs}$  ( $A_y$ ) в сварочном аэрозоле убывает с уменьшением поверхностной активности  $^{137}\text{Cs}$  в наплавляемых пластинах, причем для респиратель-

ной фракции ТССА<sub>2,5</sub>  $A_y$  в среднем на 20 ч 30 % выше. Этого и следовало ожидать, поскольку возгоняющиеся в результате термического воздействия процесса сварки на наплавляемый металл летучие формы  $^{137}\text{Cs}$  сорбируются частицами сварочного аэрозоля.

Как известно, в ТССА по дисперсности и механизму образования можно выделить три группы частиц [5, 6]: 1) конденсационного происхождения размером менее 0,1 мкм; 2) дезинтеграционного происхождения размером более 0,5 мкм; 3) агломераты различных размеров и форм (в виде цепочек и рыхлых структур с различной плотностью упаковки), образованные в результате коагуляции преимущественно частиц конденсационного происхождения. Частицы дезинтеграции капле электродного металла и материалов покрытия электродов (массовая доля в области размеров 2,5 ч 20 мкм превышает 70 %) представляют собой сферы, на гладкой поверхности которых располагаются частицы конденсационного происхождения [7]. Поэтому удельная активность  $^{137}\text{Cs}$ , которая пропорциональна удельной поверхности частиц, будет больше для респираторной фракции ТССА<sub>2,5</sub>.

Следует также отметить, что соотношение активностей  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  в наплавляемых пластинах и сварочном аэрозоле не сохраняется. При типичных для условий эксперимента временах (10 ч 20 с) отбора проб  $^{90}\text{Sr}$  был обнаружен в ТССА<sub>2,5</sub> только при наплавке пластин пятой серии ( $E_i = 1,3$  кДж/мм) – при  $A_n(^{137}\text{Cs})/A_n(^{90}\text{Sr}) = 2,86$  отношение удельных активностей составляет  $A_y(^{137}\text{Cs})/A_y(^{90}\text{Sr}) = 135$ . Только с увеличением времени отбора до 50 ч 60 с, когда масса осажденных аэрозолей превышала 2 мг,  $^{90}\text{Sr}$  был обнаружен в ТССА<sub>2,5</sub> и при наплавке пластин других серий. Эти результаты согласуются с малой летучестью оксида стронция (температура кипения SrO 3270 К) из сварочной ванны, средняя температура которой незначительно (100 ч 200 К) превышает температуру плавления железа, хотя в области катодного пятна она может достигать 2600 К [8].

Установлено, что наилучшее согласие с экспериментальными данными дает степенная зависимость удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в ТССА от поверхностной активности наплавляемых пластин (см. рис. 2 и 3):  $A_y = N \cdot (A_n)^n$ , где  $N$  и  $n$  – эмпирические постоянные, величина которых зависит от вида покрытия электродов. Для респираторной фракции ТССА<sub>2,5</sub>:  $N = 0,274$  для электродов с рутиловым покрытием и  $N = 0,19$  для электродов с карбонатно-флюоритовым покрытием; показатель  $n$  равен 0,6 и 0,57 соответственно. Отметим, что численные значения  $N$  и  $n$  не зависят от погонной энергии сварки. Коэффициент  $N$  характеризует отношение скорости изменения поверхности пластины ( $\text{см}^2/\text{с}$ ), с которой возгоняются летучие формы  $^{137}\text{Cs}$ , и интенсивности выделений ТССА ( $\text{мг}/\text{с}$ ) в процессе наплавки. Интенсивность выделений ТССА при сварке покрытыми электродами пропорционально зависит от электрической мощности дуги  $I \cdot U = E_i \cdot v$ , т.е. от произведения погонной энергии сварки на скорость сварки [2]. Такую же зависимость от  $I \cdot U$  для движущегося линейного источника теплоты на пластине [9] имеет скорость изменения площади зоны, нагреваемой выше заданной температуры. Именно этот случай моделирует наплавку пластины с глубоким проплавлением. Последнее объясняет независимость коэффициента  $N$  в аппроксимационных формулах от режима сварки.

По балансу активности  $^{137}\text{Cs}$  в процессе сварки оценим размеры зоны на пластине, с которой возгоняются радионуклиды цезия. Для оценки используем наши экспериментальные данные, полученные в опытах ( $E_i = 1,3$  кДж/мм,  $v = 0,5$  см/с,  $I = 200$  А,  $U = 33$  В): средние значения интенсивности выделений при наплавке пластин пятой серии электродами АНО-4 составляют  $G_{\text{tot}} = 13,1$  мг/с для ТССА<sub>tot</sub> и  $G_{2,5} = 10,2$  мг/с для ТССА<sub>2,5</sub>, а удельные активности  $^{137}\text{Cs}$  – 6 и 7,6 Бк/мг соответственно. Следовательно, в единицу времени в сварочный аэрозоль переходит активность приблизительно 78 Бк. С другой стороны, полагая полный переход радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  с пластины в аэрозоль, можно оценить скорость изменения площади возгонки ( $\Delta S/\Delta t$ ) и ее ширину ( $\Delta L$ ):  $\Delta S/\Delta t = 78 \text{ Бк}/\text{с} / 200 \text{ Бк}/\text{см}^2 = 0,39 \text{ см}^2/\text{с}$ ,  $\Delta L = 0,39 \text{ см}^2/\text{с} / 0,5 \text{ см}/\text{с} = 0,78 \text{ см}$ . Сравнивая значение  $\Delta L = 0,78 \text{ см}$  с шириной шва наплавки 1,1 см (характеризует ширину сварочной ванны – зону на пластине, нагреваемую выше температуры плавления железа,  $T_{\text{пл}} = 1805 \text{ К}$ ), видим, что предположение о полном переходе

$^{137}\text{Cs}$  даже из сварочной ванны в аэрозоль не выполняется. Оценим ширину зоны, нагреваемой выше 880 К (температура начала разложения карбоната цезия) по модели быстро движущегося линейного источника теплоты на плоскости [9]:

$$\Delta L = \frac{0,484 \cdot \eta \cdot E_i}{c_p \cdot d \cdot \Delta T} = 2,2 \text{ см}, \quad (1)$$

где  $\eta \cdot E_i$  – эффективная погонная энергия сварки, Дж/см (при сварке покрытыми электродами на постоянном токе  $\eta \approx 0,8$ );  $d$  – толщина пластины;  $\Delta T$  – приращение температуры ( $\Delta T = 880 - 300$  К);  $c_p$  – объемная теплоемкость (для низкоуглеродистой стали  $c_p \approx 5$  Дж/(см<sup>3</sup> · К)).

Таким образом, за единицу времени с поверхности пластины в сварочный аэрозоль должна перейти активность приблизительно 220 Бк/с ( $200 \text{ Бк/см}^2 \cdot 2,2 \text{ см} \cdot 0,5 \text{ см/с}$ ), т.е. фактически в 2,8 раза больше, чем наблюдается в эксперименте.

К сожалению, из-за габаритов пластин активность  $^{137}\text{Cs}$  в металле наплавки и шлаке не удалось измерить на гамма-спектрометре. Однако процедура дезактивации пластин показала, что  $^{137}\text{Cs}$  содержится не только в шлаке, но и в приповерхностных слоях металла наплавки и может быть удален только в процессе кислотного травления.

Другим примером служит эксперимент по определению потерь  $^{137}\text{Cs}$  при прокаливании. Для него были использованы две подложки из низкоуглеродистой стали Ст3 размером 30 Ч 30 Ч 1,5 мм, покрытые естественным коррозионным слоем железа. На поверхность каждой подложки методом накапывания был нанесен определенный объем раствора  $^{137}\text{Cs}$  (без носителя), который был предварительно приготовлен из образцового раствора  $^{137}\text{Cs}$  путем перевода из слабокислого хлоридного состояния в нейтральный карбонатный раствор. После высыхания рабочего раствора подложки помещали в муфельную печь, предварительно нагретую до 1300 К, и выдерживали определенное время. Затем подложки вынимали, охлаждали и измеряли активность  $^{137}\text{Cs}$ . Всю процедуру (цикл) повторяли три раза. Характерное время контактного нагрева подложек до 1300 К в муфельной печи (для каждого цикла) не превышало 60 с. Результаты измерений активности подложек приведены в табл. 2.

Таблица 2. Измерение активности  $^{137}\text{Cs}$  на подложках в процессе их прогрева в муфельной печи при 1300 К

Номер цикла	Подложка № 1, исходная активность ( $A_0$ ) 5700 Бк		Подложка № 2, исходная активность ( $A_0$ ) 870 Бк	
	Продолжительность нагрева ( $\Delta t$ ), мин	Активность после завершения цикла ( $A_t$ ), Бк	Продолжительность нагрева ( $\Delta t$ ), мин	Активность после завершения цикла ( $A_t$ ), Бк
1	3	2900	6	230
2	5	1200	5	48
3	5	630	5	38

После третьего цикла с каждой подложки был снят оксидный слой (легко удаляемый) и измерены их активности. Результаты показали, что вся активность после третьего цикла сосредоточена в оксидном слое.

Как известно, на воздухе при температурах выше 880 К происходит термолит карбоната цезия с образованием  $\text{Cs}_2\text{O}$ . Напротив, в атмосфере  $\text{CO}_2$  карбонат  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$  плавится без разложения при  $T \approx 1140$  К и только при более высоких температурах наблюдается его диссоциация с отщеплением  $\text{CO}_2$  [10]. В то же время при температурах, превышающих 950 ч 1000 К, начинается взаимодействие оксида железа с карбонатом цезия (при их смешении) с образованием (в зависимости от мольного соотношения  $\text{Cs}_2\text{CO}_3/\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) низколетучих моноферрита ( $\text{CsFeO}_2$ ) или полиферритов ( $\text{Cs}_2\text{O} \cdot n\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) цезия [11].

Наблюдаемый характер зависимости  $A_t$  от времени прокаливания подложек (см. табл. 2) можно объяснить преимущественным протеканием термолита карбоната  $^{137}\text{Cs}$ . Дей-

ствительно, если считать, что процесс не лимитируется отводом  $\text{CO}_2$  и скорость реакции термолитза можно принять пропорциональной количеству неразложившегося к данному моменту времени карбоната  $^{137}\text{Cs}$ , то его текущее содержание ( $m_t$ ) на подложке будет изменяться по экспоненциальному закону

$$\frac{m_t}{m_0} = \exp(-kt), \quad (2)$$

где  $m_0$  – начальное содержание карбоната;  $k$  – константа скорости реакции;  $t$  - текущее время прокаливания.

Текущая активность  $A_t$  карбоната  $^{137}\text{Cs}$  пропорциональна его содержанию на подложке. На рис. 4 представлены данные табл. 2 в координатах  $\ln(A_t/A_0)$  и  $t$ .

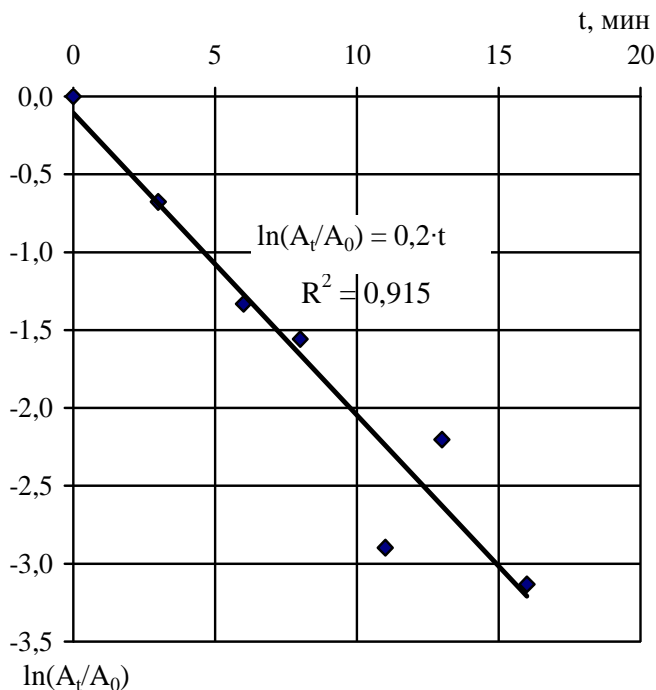


Рис. 4. Зависимость  $\ln(A_t/A_0)$  от времени прокаливания подложек.

Как видим, процесс дезактивации подложек хорошо описывается кинетическим уравнением (2) с  $k = 0,2 \text{ мин}^{-1}$ . Таким образом, благодаря термолитзу  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$  за каждые 5 мин прокаливания его количество на подложке уменьшается в  $e$ -раз. А доли летучих форм  $^{137}\text{Cs}$ , возгоняющихся в результате прокаливания подложек, составили 89 % для подложки 1 (13 мин) и 96 % для подложки 2 (16 мин).

Между тем физико-химические условия протекания реакций термолитза и ферритообразования в зоне термического влияния процесса сварки на поверхности наплавляемых пластин существенно отличаются от рассмотренных выше, прежде всего температурой и газодинамической обстановкой, определяющих массообмен и скорость реакций, а также продолжительностью взаимодействия. Так, температура поверхности пластины из низкоуглеродистой стали вдоль оси наплавки в области нагрева (перед движущейся сварочной дугой) меняется

от 300 до 1900 К (средняя температура сварочной ванны), а характерные градиенты составляют 300 ч 800 К/с в зависимости от  $E_t$ . Кроме того, высокое содержание  $\text{CO}_2$  в атмосфере дуги (образуется в результате диссоциации карбонатов покрытия электродов: мрамора УОНИ 13/45 и магнезита АНО-4) приводит к замедлению реакции термолитза  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$ . Эти факторы в какой-то степени уравнивают условия протекания реакции ферритообразования и термолитза карбонатов цезия на поверхности наплавляемых пластин. Образующиеся на поверхности пластины ферриты  $^{137}\text{Cs}$  не возгоняются, попадают в сварочную ванну и после остывания остаются в виде включений в шлаке и приповерхностных слоях металла шва. Как следствие, доля летучих форм  $^{137}\text{Cs}$ , возгоняющихся из зоны шва наплавки на пластине, не превышает 40 %.

Результаты определения содержания элементов и интенсивности выделений  $\text{TSSA}_{2,5}$  в процессе наплавки пластин электродами АНО-4 и УОНИ 13/45 показаны в табл. 3.

Как известно, состав электродного покрытия оказывает большое влияние на интенсивность выделений ТССА и его химический состав при прочих равных условиях (например, [3]). Так, более высокие значения  $G$  при наплавке электродами УОНИ 13/45 обусловлены образованием летучих соединений фтора и высокой основностью шлака, способствующей интенсивному испарению кальция. Кроме того, большое содержание мрамора (53 %) и пла-

викового шпата  $\text{CaF}_2$  (18 %) в покрытии способствует развитию процессов дезинтеграции материалов электрода вследствие взрывообразного газовыделения в объеме плавящегося по-

**Таблица 3. Интенсивность выделений (G, мг/с) и элементный состав ТССА<sub>2,5</sub> электродов АНО-4 и УОНИ 13/45 при  $E_i=1,3$  кДж/мм**

Элементный состав*, % мас.	Рутиловое покрытие (АНО-4) при $G_{2,5} = 10,2$	Карбонатно-флюоритовое покрытие (УОНИ 13/45) при $G_{2,5} = 12,5$
алюминий	1,19	0,59
кремний	10,4	3,56
калий	6,11	5,12
кальций	0,06	14,02
титан	1,29	0,08
марганец	6,32	4,86
железо	35,89	23,47
примеси**	1,04	0,93

\* Метод XRF не позволяют определить содержание углерода, кислорода, фтора, натрия и магния для приведения массы ТССА<sub>2,5</sub> к 100 %.

\*\* Хлор, хром, кобальт, никель, медь, цинк, рубидий, стронций, селен и т.д.

крытия (термолиз  $\text{CaCO}_3$ , пиролиз  $\text{CaF}_2$ ) и сжатие дуги углекислым газом, что также приводит к увеличению G. В то же время переход из покрытия электродов АНО-4 (основу составляют рутил  $\text{TiO}_2$  – 44 %, мусковит  $\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OH})_2$  – 24 % и магнезит  $\text{MgCO}_3$  – 15 %) магния, алюминия и титана незначителен (см. табл. 3). Цезий в сварочном аэрозоле не обнаружен, а низкое содержание стронция в ТССА<sub>2,5</sub> – 0,006 ч 0,008 % для УОНИ 13/45 и 0,003 ч 0,004 % для АНО-4 объясняется его незначительным содержанием в материалах покрытия электродов (стронций как примесь присутствует во всех минералах, содержащих кальций).

Удельная активность респираторной фракции сварочного аэрозоля электродов УОНИ 13/45 в среднем на 45 – 65 % ниже, чем в ТССА<sub>2,5</sub> электродов АНО-4 при прочих равных условиях, несмотря на то, что интенсивности их выделений отличаются всего на 23 % (см. рис. 2 и 3). Это различие, по-видимому, обусловлено большим количеством  $\text{CO}_2$ , образующимся при плавлении покрытия электродов УОНИ 13/45 и замедлением реакции термолиза  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$  на поверхности наплавляемых пластин в зоне термического влияния процесса сварки. Следовательно, состав покрытия электродов влияет и на переход летучих форм  $^{137}\text{Cs}$  в сварочный аэрозоль в процессе наплавки.

### Заключение

Исследованы закономерности перехода радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  с поверхности радиоактивных металлоконструкций в сварочный аэрозоль при дуговой сварке покрытыми электродами. Показано, что при термолизе карбоната цезия летучие формы цезия переходят в паровую фазу и сорбируются на частицах ТССА пропорционально их удельной поверхности: удельная активность респираторной фракции ТССА<sub>2,5</sub> на 20 – 30 % выше, чем у всего сварочного аэрозоля. В то же время образующиеся в результате взаимодействия оксида железа с карбонатом цезия ферриты  $^{137}\text{Cs}$  не возгоняются, попадают в сварочную ванну и после остывания остаются в шлаке и приповерхностных слоях металла шва. Удельная активность  $^{137}\text{Cs}$  в сварочном аэрозоле убывает по степенному закону  $A_v = N \cdot (A_n)^n$  с уменьшением поверхностной активности  $^{137}\text{Cs}$  наплавляемых пластин и не зависит от режима (погонной энергии) сварки. Установлено, что удельная активность  $^{137}\text{Cs}$  в сварочном аэрозоле зависит от состава покрытия электродов. Полученные зависимости можно использовать для прогнозирования радиационной обстановки в воздухе рабочей зоны при сварке радиоактивно загрязненных металлоконструкций электродами с рутиловым (АНО-4) и карбонатно-флюоритовым (УОНИ-13/45) покрытиями.

Работа выполнена при технической поддержке Центра микроанализа Антверпенского



университета (Бельгия). Авторы приносят глубокую благодарность его сотрудникам А. Worobies, L. Darchuk и В. Noremans за содействие в выполнении работы.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Огородников Б.И., Пазухин Э.М., Ключников А.А. Радиоактивные аэрозоли объекта «Укрытие»: 1986 – 2006 гг. – Чернобыль: ИПБ АЭС НАН Украины, 2008. – 456 с.
2. Эннан А.А. Физико-химические основы улавливания, нейтрализации и утилизации сварочных аэрозолей // Тр. 1-й Междунар. науч.-практ. конф. «Защита окружающей среды, здоровье, безопасность в сварочном производстве» (Одесса, 11 - 13 сентября 2002 г.). – Одесса: Астропринт, 2002. – С. 10 – 17.
3. Походня И.К., Горпенюк В.Н., Миличенко С.С. и др. Металлургия дуговой сварки. Процессы в дуге и плавление электродов / АН УССР. Ин-т электросварки им. Е. О. Патона – К.: Наук. думка, 1990 – 24 с.
4. Spolnik Z., Belikov K., Van Meel K. et al. Optimization of measurement conditions of an energy dispersive X-ray fluorescence spectrometer with high-energy polarized beam excitation for analysis of aerosol filters// Applied Spectroscopy. - 2005. - Vol. 59 (12). – P. 1465 - 1469.
5. Zimmer A.T., Biswas P. Characterization of the aerosols resulting from arc welding processes. Journal of Aerosol Science. – 2001. – Vol. 32 (8). – P. 993 - 1008.
6. Jenkins N.T., Pierce W.M.G.; Eagar T.W. Particle size distribution of gas metal and flux cored arc welding fumes // Welding Journal. – 2005. – Vol. 84 (10). – P. 156 S - 163 S.
7. Эннан А.А., Опря М.В., Киро С.А., Воробец А. О составе ингаляционных частиц сварочного аэрозоля // Материалы XXIV науч. конф. стран СНГ «Дисперсные системы». – Одесса: Астропринт, 2010. – С. 327 – 330.
8. Voitkevich V. G. Welding fumes formation, properties and biological effects / Abington Publishing, 1995.
9. Фролов В.В., Волченко В.Н., Ямпольский М.В. и др. Теория сварочных процессов. – М.: Высш. шк., 1988. – 559 с.
10. Плющев В. Е., Степин Б. Д. Химия и технология соединений лития, рубидия и цезия. – М.: Химия, 1970. – 408 с.
11. Качалов Д.В., Степанов Е.Г., Котельников Г.Р. Исследование процессов образования каталитически активных ферритов щелочных металлов // Изв. ВУЗов. Химия и химическая технология. – 2008.– Т. 51, № 7. – С. 45 – 47.

**А. А. Эннан, М. В. Опря, С. А. Киро, В. Є. Хан, Б. І. Огородников, В. О. Краснов**

#### **УТВОРЕННЯ АЕРОЗОЛІВ-НОСІЇВ $^{137}\text{Cs}$ І $^{90}\text{Sr}$ ПРИ ЗВАРЮВАННІ РАДІОАКТИВНО ЗАБРУДНЕНИХ МЕТАЛОКОНСТРУКЦІЙ**

Представлено результати дослідження впливу основних параметрів процесу зварювання на закономірності переходу радіонуклідів  $^{137}\text{Cs}$  і  $^{90}\text{Sr}$  у зварювальний аерозоль. Питома активність  $^{137}\text{Cs}$  у зварювальному аерозолі убиває за степеневим законом зі зменшенням поверхневої активності пластин, що наплавляються, залежить від складу покриття електродів і не залежить від погонної енергії зварки. Активність респірабельної фракції зварювального аерозолю перевищує на 20 – 30 % активність зварювального аерозолю в цілому.

*Ключові слова:* зварювальні аерозолі, респірабельна фракція, активність радіонуклідів  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , об'єкт «Укриття».

**A. A. Ennan, M. V. Oprya, S. A. Kiro, V. E. Khan, B. I. Ogorodnikov, V. A. Krasnov**

#### **$^{137}\text{Cs}$ AND $^{90}\text{Sr}$ AEROSOL-CARRIERS ORIGINATION WHEN WELDING RADIOACTIVELY CONTAMINATED METAL STRUCTURES**

The results of research of main parameters of welding process influence to  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  radionuclides transition regularity in a welding aerosol are demonstrated. The  $^{137}\text{Cs}$  specific activity in welding aerosol decreases according to power law with lessening of surface activity of plates being welded on, and depends on content of electrode cover and does not depend on welding heat input. Respirable fraction activity of welding aerosol exceeds at 20 – 30 % the welding aerosol activity as a whole.



*Keywords:* welding aerosols, respirable fraction,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  radionuclide activity, “Ukruttya” object.

Поступила в редакцию 13.04.11