

Министерство науки и высшего образования
Российской Федерации

Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»

А.К. Будыка, Д.А. Припачкин

**РАДИОАКТИВНЫЕ АЭРОЗОЛИ.
НАЧАЛЬНЫЕ СВЕДЕНИЯ**

Учебное пособие

Москва 2022

УДК 539.16:544.772(075.8)
ББК 22.38:24.6я7
Б 90

Будыка А.К., Припачкин Д.А. **Радиоактивные аэрозоли. Начальные сведения:** Учебное пособие. М.: НИЯУ МИФИ, 2022. 96 с.

Даны начальные сведения об аэрозолях вообще и о радиоактивных аэрозолях в частности. Приведены определения, классификация, основные характеристики и свойства аэрозолей. Рассмотрены особенности образования радиоактивных аэрозолей. Изложены методы определения основных характеристик природных и техногенных радиоактивных аэрозолей: объемной активности, нуклидного, фазового и дисперсного составов, растворимости, распределения активности в аэрозольных частицах. Описаны свойства радиоактивных аэрозолей, образующихся на предприятиях ядерного топливного цикла, и аэрозолей – продуктов аварии на Чернобыльской АЭС (1986 г.). Приведены характеристики аэрозолей, образовавшихся при аварии АЭС «Фукусима-дайити» (2011 г.). Для более глубокого изучения поведения аэрозолей в конце пособия приведен перечень соответствующей научной и учебной литературы.

Предназначено студентам и аспирантам, обучающимся по направлениям подготовки «Ядерная энергетика и теплофизика», ядерные физика и технологии, специальности «Атомные станции: проектирование, эксплуатация и инжиниринг». Пособие также может быть полезно студентам при изучении учебных курсов «Экология», «Безопасность жизнедеятельности».

Рецензент д-р техн. наук, проф. В.М. Минашкин

ISBN 978-5-7262-2886-0

© Национальный исследовательский
ядерный университет «МИФИ», 2022

Редактор М.В. Макарова

Подписано в печать 30.08.2022. Формат 60×84 1/16.
Уч.-изд. л. 6,0. Печ. л. 6,0. Изд. № 015-1.
Тираж 100 экз.

Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ».
Типография НИЯУ МИФИ.
115409, Москва, Каширское ш., 31.

О г л а в л е н и е

Введение	4
1. Основные определения. Классификация аэрозолей	7
2. Природные и техногенные аэрозоли	10
3. Радиоактивные аэрозоли и Нормы радиационной безопасности	11
Контрольные вопросы к разд. 1–3	17
4. Общие характеристики аэрозолей	17
4.1. Концентрация аэрозолей	17
4.2. Размер и форма аэрозольных частиц	19
4.3. Распределение частиц по размерам	23
Контрольные вопросы к разд. 4	31
5. Процессы образования аэрозолей	31
5.1. Конденсация	31
5.2. Диспергирование	34
5.3. Особенности образования радиоактивных аэрозолей	36
Контрольные вопросы к разд. 5	39
6. Свойства и поведение аэрозолей	40
6.1. Трансформация размеров аэрозольных частиц	40
6.2. Электрические свойства аэрозолей	46
6.3. Аэрозоли, содержащие газообразные продукты	49
Контрольные вопросы к разд. 6	53
7. Характеристики радиоактивных аэрозолей	54
7.1. Нуклидный состав техногенных радиоактивных аэрозолей	54
Контрольные вопросы к разд. 7.1	58
7.2. Эволюция фазового состава радиоактивных аэрозолей	58
Контрольные вопросы к разд. 7.2	65
7.3. Размеры радиоактивных аэрозольных частиц	65
7.3.1. Влияние дисперсного состава аэрозолей на дозу внутреннего облучения	65
Контрольные вопросы к разд. 7.3.1	70
7.3.2. Измерения распределения по размерам	70
Контрольные вопросы к разд. 7.3.2	82
7.3.3. Дисперсный состав некоторых естественных и техногенных радиоактивных аэрозолей	83
Контрольные вопросы к разд. 7.3.3	91
7.4. Определение растворимости радиоактивных аэрозолей	91
7.5. Структура индивидуальных аэрозольных частиц	93
Заключение	95
Рекомендуемая литература	96

ВВЕДЕНИЕ

Развитие промышленности, появление новых отраслей с неизученными последствиями воздействий сопутствующих факторов на экосистемы, локальные и крупномасштабные аварии, рост парка автотранспорта и т.д. ведут к непрерывному загрязнению воды, почвы, атмосферы. Одно из первостепенных опасений вызывает загрязнение атмосферного воздуха вредными веществами.

Даже в воздухе, характерном для биосферных заповедников, содержится не менее 100 аэрозольных частиц в 1 см^3 . Известно, что человек за 1 сут потребляет 2–3 л воды, 1–2 кг пищи и пропускает через легкие более 20000 л воздуха. Таким образом, аэрозоль составляет привычную для человека среду обитания, а качество атмосферного воздуха является одним из важнейших критериев состояния окружающей среды.

К появлению аэрозольных частиц приводят разнообразные природные и техногенные явления. За счет ряда процессов происходит изменение характеристик первичных частиц, например их коагуляция, выведение из атмосферы, изменение состава за счет химических реакций и т.д.

Концентрации большинства вредных веществ, обычно присутствующих в воздухе, весьма низки. Отметим, что высокие концентрации вредных природных веществ (например, метана или диоксида серы) наблюдаются в исключительных случаях.

К *загрязнителям* воздуха принято относить вещества, присутствующие в атмосфере в высоких по сравнению с фоновыми значениями концентрациях и возникающие, как правило, в результате человеческой деятельности, связанной с получением энергии, а также с химической, металлургической промышленностью.

Вещества-загрязнители присутствуют в атмосфере в газообразном и дисперсном (твердом или жидком) состояниях. Некоторые токсичные газы вследствие различных реакций образуют аэрозоли с твердой или жидкой дисперсной фазами, причем равновесные условия между газом и аэрозолем достигаются достаточно быстро.

Под «безопасным» состоянием воздушной среды понимают ее соответствие современным гигиеническим требованиям, предъявляемым к нормальному функционированию человеческого организма. При этом природная среда не испытывает больших антропогенных нагрузок, нарушающих экосистемы. Существуют санитарные нормы, которые устанавливаются исходя из физиологических особенностей человека. Однако в современных условиях удержаться в этих нормативах невозможно. Поэтому вынуждены от них отступать и устанавливать допустимое загрязнение воздушной среды, не оказывающее значимого вредного воздействия на человека и природу. Допускаемые показатели официально утверждаются государственными инстанциями в виде предельно допустимых концентраций (ПДК) тех или иных веществ в воздухе и предельно допустимых выбросов (ПДВ) вредных веществ промышленными предприятиями.

Содержание радиоактивных веществ в атмосфере обычно незначительно (исключение составляют эманации естественного радона, объемная активность которого может быть очень велика в шахтах и подвалах зданий). Тем не менее, крупные ядерные аварии, такие как в Чернобыле и Фукусиме, приводят к глобальному загрязнению атмосферы радиоактивными продуктами вследствие процессов атмосферного переноса и выпадения аварийных продуктов. И надо помнить о том, что перенос радиоактивных нуклидов осуществляется главным образом на аэрозолях.

Особое место в гигиенической практике занимают радиоактивные газы и аэрозоли, допустимые концентрации (объемные активности) которых приведены в Нормах радиационной безопасности (НРБ). Значения допустимых объемных активностей (ДОА) радиоактивных веществ в воздухе, пересчитанных в единицы массовой концентрации, в миллионы раз меньше, чем для самых токсичных нерадиоактивных веществ и соединений. Наибольшую опасность представляют аэрозоли, частицы которых содержат α -активные нуклиды. Это обусловлено тем, что ионизирующая способность и индуцируемые радиобиологические эффекты при прохождении через биологические ткани α -частиц существенно выше, чем у β -частиц и γ -излучения. Поэтому существуют весьма жесткие нормативные ограничения концентраций α -излучателей. Например, ДОА ^{239}Pu равна $3,2 \times 10^{-2}$ Бк/м³. Если предположить, что взвешен-

ные в воздухе частицы диаметром 5 мкм целиком состоят из изотопа ^{239}Pu , за год в органах дыхания профессионального работника (категория А) «разрешено» осесть не более миллиону таких частиц. Для населения эта цифра должна быть меньше в 40 раз (не более 25 тыс. част.).

Некоторые радиоактивные вещества и их соединения могут находиться в воздухе одновременно в дисперсном и газообразном состоянии, например соединения полония, йода, ртути, рутения и других радионуклидов. Поэтому при обращении с подобными системами требуется особая предосторожность, обусловленная сложностью их отбора и анализа, а также необходимостью защиты от их вредного воздействия на организм.

Жесткие требования, предъявляемые к качеству воздуха, обуславливают необходимость *тщательного контроля содержания вредных примесей и определения их физико-химических характеристик*, влияющих на человеческий организм и на окружающую среду. Всесторонний контроль воздуха технологических, производственных помещений и окружающей среды осуществляют с помощью *атмосферного мониторинга* – инструментально-методического комплекса для получения информации о воздушных примесях.

Характеристики радиоактивных аэрозолей и газов необходимы для моделирования их распространения (от источников их образования) в производственных и технологических помещениях и коммуникациях, на промплощадке, в приземном слое атмосферы контролируемой зоны. Эти характеристики необходимы также для использования в расчетных моделях регионального и глобального переноса аэродисперсных загрязнений. Без характеристик аэрозольных частиц невозможно определить дозу внутреннего облучения персонала предприятий атомной отрасли и любых производств, где используются источники излучений; нельзя подобрать необходимые средства индивидуальной и коллективной защиты органов дыхания т.д.

Несмотря на обширный круг вопросов, в которых знание основных характеристик и свойств радиоактивных аэрозолей необходимо, в учебной литературе этим вопросам не уделено достаточно внимания. По-видимому, аэрозольные проблемы считаются слишком очевидными. Тем не менее, специалисту атомной отрасли ред-

ко удастся самостоятельно разобраться в аэрозольных проблемах, будь то правильный выбор и использование средств отбора и измерения проб или корректная оценка доз. Важно также понимать сходство и различие в поведении радиоактивных и неактивных частиц. Например, закономерности отбора проб вне зависимости от их химического состава описываются законами движения аэрозольных частиц вблизи препятствий и поведением газового потока.

1. ОСНОВНЫЕ ОПРЕДЕЛЕНИЯ. КЛАССИФИКАЦИЯ АЭРОЗОЛЕЙ

Несмотря на то, что аэрозоль является привычной средой обитания человека, большинство людей путают аэрозоль с паром, пар с газом, смешивают понятие «аэрозоль» с распылителем, используемым в быту и медицине (аэрозольным баллончиком, небулайзером) и т.п.

Строгое определение звучит следующим образом. *Аэрозоль* – дисперсная система с газообразной средой (дисперсионная среда) и с твердой или жидкой дисперсной фазой.

В большинстве практических случаев газообразной средой является воздух, давление которого в приземном слое атмосферы близко к нормальному ($1,013 \times 10^5$ Па), а температура лежит в диапазоне от -30 до $+30$ °С. Поэтому под аэрозолем обычно подразумевают взвесь твердых или жидких частиц в воздухе. В научной литературе аэрозоль иногда называют *аэродисперсной системой*.

Существует два основных механизма получения аэрозолей: *конденсация* и *диспергирование* (дробление). Соответственно, аэрозоли, образованные при конденсации, называют *конденсационными*, а полученные при дроблении (т.е. с помощью механических процессов) – *диспергационными*. В ряде случаев наблюдаемые реальные аэрозоли образуются в результате действия обоих механизмов.

К аэрозолям относятся весьма разнообразные объекты, одновременно имеющие и свои особые названия: *пыль* (в англоязычной литературе – dust), *дым* (smoke), *туман* (fog, fume), *мгла* (mist), *смог* (smog = smoke + fog), *дымка* (haze). Жидкие мелкие капли, образуемые при пневматическом распылении, называют *спреем* (spray).

Различные типы аэрозолей определяются следующим образом.

Туман – конденсационные и диспергационные аэрозоли с жидкими частицами.

Пыль – диспергационные аэрозоли с твердыми частицами.

Дым – конденсационные аэрозоли с твердой дисперсной фазой. Сюда же относятся и системы конденсационного происхождения, содержащие твердые и жидкие частицы (например, дым, образующийся при неполном сгорании органического топлива).

Смог – особое название аэродисперсной системы, состоящей из дыма и тумана и содержащего обычно продукты фотохимических реакций и частицы атмосферной влаги. Смоги возникают над промышленными зонами и крупными городами при наличии над этими территориями инверсного (запирающего) слоя атмосферы, препятствующего рассеиванию примесей. Характерным примером является смог, состав которого был впервые изучен в атмосфере над Лос-Анжелесом. Лос-Анжелесский смог состоит из капель, часть которых содержит темно-коричневые, клейкие и нерастворимые в воде органические соединения. Другой тип смога – лондонский – в основном содержит смесь угольного дыма и тумана.

Облаком (cloud) в русскоязычной научной литературе принято называть свободную, имеющую определенный размер и форму аэродисперсную систему любого типа. В зарубежной литературе облаком называют конденсационный аэрозоль с размером частиц более 0,1 мкм.

Между вышеприведенными понятиями довольно сложно провести четкую границу. Разные люди одну и ту же аэродисперсную систему могут назвать смогом, туманом, мглой или дымкой. Заметим, что дело не в названии, а в характеристиках дисперсной фазы.

Аэрозоли классифицируют также по степени однородности. *Монодисперсные* аэрозоли состоят из частиц одного размера, а *полидисперсные* содержат частицы разных размеров. Аэрозоль называется *гомогенным*, если его дисперсная фаза химически однородна. В *гетерогенных* аэрозолях обнаруживают частицы различного химического состава.

Аэрозоли могут содержать различные вредные вещества, в зависимости от характеристик которых они подразделяются на:

химически вредные аэрозоли, содержащие в дисперсной фазе токсические химические соединения, например, отравляющие вещества, пестициды, ядохимикаты;

радиоактивные аэрозоли, дисперсная фаза которых содержит радионуклиды;

биоаэрозоли, содержащие в дисперсной фазе бактерии, вирусы, простейшие одноклеточные организмы, споры и т.д. (например, вирусы гриппа, коронавирусы SARS-CoV-2 и т.п. обнаруживают в воздухе в составе аэрозольных частиц, образующихся при разговоре, пении, кашле, чихании).

Аэрозоли также подразделяют на *природные* и *техногенные*.

Природные, или естественные аэрозоли, как следует из названия, образуются вследствие конденсации и диспергирования веществ в природных процессах.

Техногенные (антропогенные) аэрозоли возникают в результате функционирования промышленных предприятий (включая предприятия ядерного топливного цикла), транспорта, при проведении сельскохозяйственных работ, при военных действиях и т.д.

Одни и те же вещества и соединения, находящиеся в аэродисперсном состоянии, могут образоваться и в природных, и в промышленных процессах. Например, тритий, находящийся в составе аэрозолей, в природе образуется при взаимодействии космического излучения с ядрами азота, а искусственным путем – например, при облучении ядер лития-6 нейтронами с образованием трития и гелия. Соединения азота (нитраты) в составе химически опасных аэрозолей также образуются и в природных процессах, и в химических производствах.

Подчеркнем, что аэрозоль – это не только частицы и не только газ, но именно *система*. Газ и частицы постоянно и непрерывно оказывают друг на друга существенное влияние. Частицы вследствие гравитации и диффузии смещаются с линий тока газа, сталкиваются друг с другом, слипаются (сливаются) между собой, испаряются, а образованные пары летучих веществ конденсируются на других частицах. Свойства и поведение аэрозоля сильно зависят от давления, вязкости, температуры и влажности газообразной среды, а также от свойств частиц.

В отличие от аэрозоля *газ* не является дисперсной системой, а представляет собой агрегатное состояние вещества. Газ макроскопически однороден и изотропен. Газ, находящийся в термодинамическом равновесии с жидкой или твердой фазой того же вещества, обычно называют *паром*. Как правило, этот термин употребляют,

когда фазовое равновесие имеет место при температурах и давлениях, характерных для обычных природных условий (к подобным парам относятся пары воды, спирта, йода, ртути, бензола и т.д.). Для многих физических задач понятия «пар» и «газ» эквивалентны. Так же, как и газы, пары нельзя уловить методами, предназначенными для захвата аэрозольных частиц (например, с помощью волокнистых или мембранных фильтров).

2. ПРИРОДНЫЕ И ТЕХНОГЕННЫЕ АЭРОЗОЛИ

К образованию аэрозолей приводят разнообразные природные и техногенные процессы. Под действием некоторых физико-химических механизмов характеристики первичных аэрозольных частиц изменяются, причем часто необратимо. Например, частицы могут испариться, слиться друг с другом, выпасть на земную поверхность из атмосферы, изменить химический состав и т.д.

Ежегодно в атмосферу Земли попадают десятки-сотни миллионов тонн взвешенных частиц. Среди *естественных* аэрозольных источников наиболее значимыми являются мировой океан, являющийся источником солевых частиц (до 300 Мт в год), вулканы (25–150 Мт вулканической пыли), лесные пожары (3–150 Мт продуктов горения древесины). Вследствие эрозии и ветрового подъема в атмосферу поступают частицы песка, почвы и горных пород (100–500 Мт). Из природных газовых выбросов образуются 270–900 Мт частиц сульфатов (из H_2S), аммониевых солей (из NH_3), нитратов (из NO_x), а растительный покров Земли ежегодно добавляет от 75 до 200 Мт аэрозольных частиц, состоящих из углеводов.

За счет эмиссии *антропогенных* аэрозольных частиц в атмосферу Земли попадает от 10 до 90 Мт вещества. Из газовых выбросов (SO_2 и NO_x) образуется 160–240 Мт аэрозольных частиц, содержащих сульфаты и нитраты.

Вклад радиоактивных аэрозолей в столь впечатляющие цифры ничтожен, если учитывать только их массовую концентрацию. При аварии на Чернобыльской АЭС 1986 г. в атмосферу было выброшено 10^{17} Бк ^{137}Cs , что соответствует примерно 30 кг данного изотопа. Тем не менее, такое ничтожное по массе количество загрязнило не только ближнюю зону вокруг аварийного блока, но и легко

обнаруживалось на аэрозолях практически во всем Северном полушарии.

В воздухе производственных и технологических помещений часто присутствуют аэрозоли и газы, сопровождающие технологические процессы на промышленных предприятиях. Источники таких промышленных загрязнителей воздуха настолько разнообразны, что в рамках данного пособия нет смысла в их рассмотрении и классификации. Изучение этих источников, проблема их локализации и снижения выбросов решается в каждой отрасли промышленности с учетом специфики производства. Эффективность защиты от вредных аэрозолей и газов на предприятиях зависит как от правильности выбора средств пыле- и газоочистки, так и от их рационального использования.

3. РАДИОАКТИВНЫЕ АЭРОЗОЛИ И НОРМЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ

Радиоактивные вещества, содержащиеся в составе дисперсной фазы, подразделяются на α -, β - и γ -излучатели. Ядра радиоактивных изотопов вследствие нестабильности испытывают превращения, в результате которых образуются дочерние изотопы, которые могут быть как стабильными, так и радиоактивными. Во втором случае последовательность ядерных превращений принято записывать в виде цепочек распада.

На рис. 1 приведены упрощенные цепочки распада естественных радионуклидов радона и торона (ряды урана и тория), в результате чего образуются нуклиды, практически всегда находящиеся в виде аэрозолей в приземной атмосфере и воздухе внутри помещений.

В результате распада ядро атома испускает частицы: α -частицы (ядра гелия), β^- - и β^+ -частицы (электроны и позитроны). Испускание частиц ядрами сопровождается сопутствующим фотонным излучением с линейчатым спектром в широком (несколько килоэлектронвольт – несколько мегаэлектронвольт) энергическом диапазоне, которое называют γ -излучением.

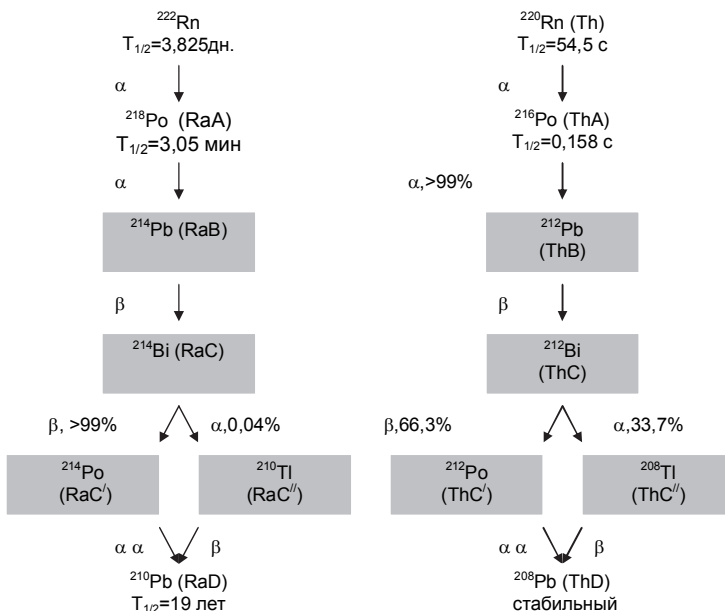


Рис. 1. Упрощенные цепочки радиоактивного распада короткоживущих дочерних продуктов радона и торона

Испускаемые ядрами α -, β - и γ -излучения при взаимодействии с веществом вызывают его *ионизацию* (образование ионов обоих знаков). Поэтому такие излучения называют *ионизирующими*. Степень ионизации зависит от типа излучения, его энергии и от свойств вещества. Наибольшей ионизирующей способностью обладает α -излучение.

Активностью вещества называется число спонтанных ядерных превращений в единицу времени. Единицей активности в международной системе единиц СИ является *беккерель (Бк)*. $1\text{ Бк} = 1\text{ с}^{-1}$ (1 расп. в секунду). Иногда используют внесистемную единицу, исключенную из обращения, но допускаемую в литературе – *кюри (Ки)*. Активность $1\text{ Ки} = 3,7 \times 10^{10}\text{ Бк}$ и примерно соответствует активности $1\text{ г }^{226}\text{Ra}$, находящегося в равновесии со своими продуктами распада.

Активность радионуклида уменьшается во времени по *закону радиоактивного распада*:

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t}. \quad (1)$$

Здесь λ – *постоянная распада*, которая связана с *периодом полураспада* $T_{1/2}$ соотношением

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}. \quad (2)$$

Очевидно, за время $T_{1/2}$ активность вещества снижается вдвое.

Между массой вещества m и его активностью A существует связь:

$$m = KMT_{1/2}A, \quad (3)$$

где M – атомная масса, K – константа, зависящая от выбранных единиц измерения. Так, если активность выражена в беккерелях, а $T_{1/2}$ в часах, то $K = 8,62 \times 10^{-21}$. При этом масса радиоактивного вещества выразится в граммах. Таблицы констант приводятся в справочниках.

В Российской Федерации для обеспечения безопасности человека при всех условиях воздействия на него ионизирующего излучения искусственного или природного происхождения установлены НРБ (Нормы радиационной безопасности), последняя редакция которых – НРБ-99/2009 введена 1 сентября 2009 г. Это основополагающий документ, регламентирующий требования Федерального закона «О радиационной безопасности населения», в форме основных пределов доз, допустимых уровней воздействия ионизирующего излучения и других требований по ограничению облучения человека. НРБ используются в случаях воздействия ионизирующих излучений: 1) при нормальной эксплуатации техногенных источников излучения; 2) при радиационных авариях; 3) от природных источников; 4) при медицинском облучении. Документ основан на многолетних комплексных исследованиях воздействия ионизирующих излучений на человеческий организм, биологические объекты и экосистемы, результаты которых отражены в публикациях национальных и международной комиссий по радиологической защите, комиссий по действию атомной радиации, Международного агентства по атомной энергии и др.

Концепция НРБ состоит в том, что соблюдение установленных в Норммах предельных уровней внешнего и внутреннего облучения не

приводит к статистически значимым вредным воздействиям на человека. Важно подчеркнуть, что *превышение предельно допустимых концентраций нерадиоактивных химических веществ не менее вредно, чем превышение допустимой объемной активности, а в ряде случаев в десятки и сотни раз более опасно.*

Источники излучений подразделяют на *природные* и *техногенные*, а также на *закрытые* и *открытые*. Из открытых источников возможно поступление содержащихся в них радионуклидов в окружающую среду, при этом часто образуются радиоактивные аэрозоли и газы (пары).

В НРБ установлены следующие категории облучаемых лиц:

- персонал (группы А и Б);
- все население, включая лиц из персонала, вне сферы их производственной деятельности.

Для *группы А* установлена предельная эффективная доза 20 мЗв в год в среднем за любые последовательные 5 лет, но не более 50 мЗв в год. Для *группы Б* допустимый уровень составляет 1/4 от соответствующей величины для группы А. Для *населения* предел эффективной дозы равен 1 мЗв в год в среднем за любые последовательные 5 лет, но не более 5 мЗв в год. Все перечисленные величины не включают в себя дозы от природного и медицинского облучения, а также дозы вследствие радиационных аварий. При одновременном воздействии на человека источников внешнего и внутреннего облучения годовая эффективная доза не должна превышать предельных доз.

Для радионуклидов, поступающих в организм (в том числе через органы дыхания), установлены значения *пределов годового поступления (ПГП)*, которое при многофакторном воздействии приводит к облучению условного человека ожидаемой дозой, равной соответствующему пределу годовой дозы.

Годовое поступление радионуклидов через органы дыхания и среднегодовая объемная активность их во вдыхаемом воздухе не должны превышать значений ПГП и *допустимых объемных активностей (ДОВА)*, рассчитанных исходя из ожидаемых пределов доз в 20 мЗв в год для персонала и 1 мЗв в год для населения. ДОВА вычислена с учетом того, что взрослый человек вдыхает на производстве $8,1 \times 10^3 \text{ м}^3$ загрязненного воздуха в год.

Для естественных радионуклидов дочерних продуктов изотопов радона ^{222}Rn и $^{220}\text{Rn} - ^{210}\text{Po}$ (RaA), ^{214}Pb (RaB), ^{214}Bi (RaC), ^{212}Pb (ThB), ^{212}Bi (ThC) значения ПГП и ДОА в единицах эквивалентной равновесной активности составляют:

$$\begin{aligned} \text{ПГП: } & 0,10\text{П}_{\text{RaA}} + 0,52\text{П}_{\text{RaB}} + 0,38\text{П}_{\text{RaC}} = 3,0 \text{ МБк}, \\ & 0,91\text{П}_{\text{ThB}} + 0,09\text{П}_{\text{ThC}} = 0,68 \text{ МБк}; \\ \text{ДОА: } & 0,10\text{A}_{\text{RaA}} + 0,52\text{A}_{\text{RaB}} + 0,38\text{A}_{\text{RaC}} = 1200 \text{ Бк/м}^3, \\ & 0,91\text{A}_{\text{ThB}} + 0,09\text{A}_{\text{ThC}} = 270 \text{ Бк/м}^3, \end{aligned}$$

где П_i и A_i – годовые поступления и среднегодовые объемные активности соответствующих дочерних изотопов радона в зоне дыхания.

В зависимости от скорости перехода радионуклида из легких в кровь химические соединения радионуклидов, находящихся на аэрозольных частицах, разделены на три типа: М (медленно растворимые соединения), П (соединения, растворимые с промежуточной скоростью) и Б (быстро растворимые соединения). Соответствующие значения скорости перехода активности радионуклида равны 0,0001; 0,005 и 100 сут^{-1} .

Для целей нормирования поступления радионуклидов через органы дыхания в форме радиоактивных газов выделены типы Г (Г1–Г3) газов и паров соединений некоторых элементов.

Расчеты ДОА выполнены для аэрозолей, описываемых логарифмически нормальным распределением частиц по размерам с активностным медианным аэродинамическим диаметром (АМАД), равным 1 мкм, и стандартным геометрическим отклонением 2,5. В расчетах использована модель органов дыхания, рекомендованная Публикацией 66 МКРЗ (см. разд. 7.3.1).

В НРБ не учитывается тот факт, что спектр размеров аэрозольных частиц может иметь иные характеристики, чем использованные в расчетах ДОА. Отличие реального АМАД от значения 1 мкм ведет к ошибке в расчете дозы (доходящей до 260 %, см. рис. 12) в сторону как ее завышения, так и занижения. Поэтому для целей дозиметрии внутреннего облучения необходимо (наряду с объемной активностью, радионуклидным составом и типом растворимости) контролировать размеры аэрозольных частиц.

В табл. 1 приведены значения $DOA_{\text{перс}}$ некоторых радионуклидов в газо-аэрозольной форме. Полная таблица имеется в приложении к НРБ.

Радиоактивные аэрозоли можно классифицировать по группам нуклидов в их составе, связанных общим способом образования:

- 1) космогенные радионуклиды;
- 2) дочерние продукты радона и торона;
- 3) продукты деления ядерного топлива;
- 4) нуклиды активационного происхождения – продукты реакции высокоэнергетических заряженных частиц с атмосферным аэрозолем и образованные при активации нейтронами продуктов коррозии в ядерных реакторах;
- 5) нуклиды в урановых шахтах, образующие аэрозоли при дроблении пород, а также при осаждении эманаций на неактивные аэрозоли, имеющиеся в горных выработках.

Таблица 1

**Значения допустимой среднегодовой объемной активности
некоторых радионуклидов для персонала**

Радионуклид	Период полураспада	Тип соединения при ингаляции*	Допустимая среднегодовая объемная активность, Бк/м ³
⁷ Be	53,3 сут	П	1,7E + 05
		М	1,5E + 05
⁹⁰ Sr	29,1 лет	Б	3,3E + 02
		М	5,3E + 01
¹⁰⁶ Ru	1,01 лет	Б	1,0E + 03
		П	3,1E + 02
		М	1,3E + 02
		Г	4,4E + 02
¹³¹ I	8,04 сут	Б	1,1E + 03
		Г ₁	4,0E + 02
		Г ₂	5,3E + 02
¹³⁷ Cs	30,0 лет	Б	1,7E + 03
²³⁹ Pu	2,41E + 04 лет	П	3,2E – 02
		М	5,3E – 01

* Тип соединений: Б – быстрорастворимое; М – медленно растворимое; П – с промежуточной растворимостью.

Примечание: $AE \pm D$ означает $A \cdot 10^{\pm D}$.

Контрольные вопросы к разд. 1–3

1. Назовите механизмы образования пыли, смога, спрея, дыма.
2. Существуют ли в природе монодисперсные аэрозоли?
3. Как образуется табачный дым?
4. Назовите природные и техногенные аэрозоли одного и того же химического состава.
5. Какие источники природных аэрозолей вносят наибольший вклад в дисперсный компонент земной атмосферы?
6. В результате аварии в атмосферу попало 10^{12} Бк ^{60}Co . Какова масса этого изотопа?
7. Объясните разницу между допустимой объемной активностью и пределом годового поступления радиоактивного аэрозоля.
8. Насколько велика может быть ошибка при определении дозы внутреннего поглощения при ингаляции радиоактивных аэрозолей, если отсутствует информация о размерах аэрозольных частиц?
9. Отметьте радиоактивные аэрозоли, образующиеся при активации: ^{137}Cs ; ^{99}Mo ; ^7Be ; ^{212}Pb ; ^{54}Mn ; ^{90}Sr ; ^{239}Pu ; ^{32}P ; ^{95}Zr .

4. ОБЩИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ АЭРОЗОЛЕЙ

4.1. Концентрация аэрозолей

Концентрация аэрозолей определяется как масса аэрозольных частиц в единице объема (массовая концентрация, г/м^3), либо как количество аэрозольных частиц в единице объема (счетная концентрация, част./м^3). В случае радиоактивных аэрозолей используют термин «*объемная активность*» (*ОА*), т.е. активность дисперсной фазы в единице объема газа, выраженная в Бк/м^3 . Ранее эту величину называли *концентрацией радиоактивных аэрозолей*.

Массовую концентрацию (объемную активность) измеряют путем улавливания дисперсной фазы из определенного объема газа, прокачанного через улавливающую среду (фильтр), и измерения массы (активности) уловленного осадка.

Цель такого измерения состоит в адекватном отражении состояния аэродисперсной системы *на момент времени отбора пробы*. Чтобы быть уверенным в том, что проведенные отбор и анализ

проб были корректными, необходимо четко представлять и по возможности учитывать источники неопределенностей. Неопределенности определяются тремя группами факторов.

К *первой группе* относятся факторы, зависящие от корректности процедуры пробоотбора и от характеристик аэродисперсной системы в период отбора пробы. Необходимым условием снижения ошибок является обеспечение правильной аспирации аэрозоля из неподвижного воздуха или воздушного потока. Для того, чтобы аэрозоли поступали на уловитель (фильтр) в той же концентрации и с теми же размерами частиц, что и в анализируемом воздухе, необходимо выполнить ряд требований, предъявляемых к воздухозаборным устройствам.

Другая неопределенность существует из-за пространственной вариации концентрации (объемной активности) аэрозолей и является трудно учитываемой. Это связано с тем, что расчет дозы выполняют исходя из измеренной концентрации аэрозолей в *одной конкретной* точке, а рабочие места персонала зачастую находятся на значительном удалении от нее. При этом трудно ожидать равномерной концентрации частиц во всем рабочем помещении. Эту неопределенность можно уменьшить, если работники будут использовать индивидуальные пробоотборники аэрозолей.

Вторую группу образуют факторы, относящиеся к анализу уже отобранной пробы. Они относительно легко учитываются благодаря имеющейся информации об эффективности улавливания аэрозолей в зависимости от их физико-химических характеристик и параметров потока; о точности определения расхода воздуха через средство улавливания (фильтр) и о точности определения уловленной массы или активности дисперсной фазы.

Наконец, *третью* группу факторов неопределенности необходимо принимать во внимание при переходе от измеренных в данный временной интервал параметров аэрозоля к дозовым характеристикам. Эти факторы обусловлены: 1) неизбежной эволюцией аэродисперсной системы после завершения отбора пробы; 2) особенностью осаждения аэрозольных частиц в органах дыхания и дальнейшем поведении соединений радионуклидов.

Заметим, что концентрация аэрозолей может меняться в очень широких пределах в зависимости от интенсивности образования, скорости выпадения и рассеивания аэрозольных частиц в газовой среде.

4.2. Размер и форма аэрозольных частиц

Все свойства аэрозолей и происходящие в них процессы в той или иной степени зависят от размеров. Для упрощения теоретического анализа таких процессов удобнее всего *форму* частиц считать сферической. На самом деле из частиц сферической формы состоят аэрозоли с жидкой дисперсной фазой, в то время как у твердых частиц наблюдают разнообразие форм. Частицы, у которых размеры в первом приближении совпадают по всем трем координатным осям, называются *изометрическими* (например, сферы, правильные многогранники и близкие к ним по форме частицы). Часто в воздухе витают чешуйки, диски и т.п., т.е. частицы, у которых один размер (толщина пластинки) много меньше двух других. Встречаются аэрозольные частицы-волокна, протяженные в одном направлении. Промышленные аэрозоли, образующиеся при сварке металлов, представляют собой причудливые образования из мельчайших скрепленных между собой сфер, напоминающие фракталы. Очевидно, что форма частиц зависит от исходного вещества и способа образования аэрозоля.

Разнообразие форм и размеров аэрозольных частиц различного происхождения иллюстрирует рис. 2.

Размеры частиц сильно влияют на физико-химические свойства аэрозолей. В частности, от размера зависит скорость испарения и роста капель; сила сопротивления движению частицы в газе; скорость коагуляции; коэффициенты отражения и поглощения излучения; эффективность осаждения в фильтре и органах дыхания.

В зависимости от среднего размера частиц, аэрозоли подразделяют на *высокодисперсные*¹ (менее 0,05 мкм), *грубодисперсные* (более 1 мкм) и с *промежуточной дисперсностью* (0,05–1 мкм). Данная классификация довольно условна и объясняется тем, что в разных размерных диапазонах характер зависимости физико-химических свойств аэрозолей от размера частиц различен. Например, интенсивность рассеянного излучения от высокодисперсных аэрозолей пропорциональна шестой степени размера частиц, в то время от более крупных частиц с диаметром более 0,2 мкм интен-

¹ В коллоидной химии под *дисперсностью* понимают величину $1/r$, т.е. обратную радиусу. Поэтому чем меньше размер частицы, тем выше дисперсность.

сивность рассеяния становится пропорциональной квадрату размера. Скорость испарения пропорциональна квадрату размера маленьких частиц, для более крупных – пропорциональна первой степени размера.

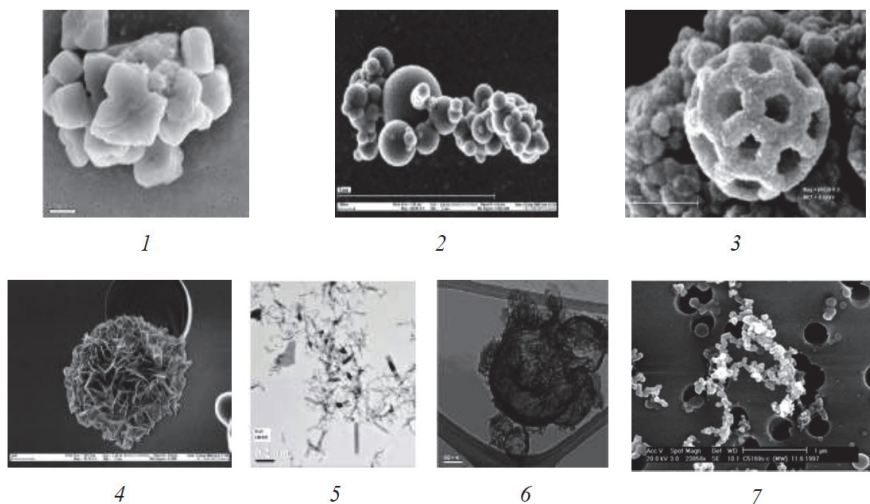


Рис. 2. Разнообразие аэрозольных частиц: 1 – хлорид натрия; 2, 4, 6 – аэрозольные частицы над средиземным морем; 3 – брохосома; 5 – частицы рутения; 7 – сажевая частица

Мелкие аэрозольные частицы выводятся из рассматриваемого пространства главным образом за счет диффузии, а частицы крупнее 10 мкм – за счет седиментации (осаждения). Взвешенные частицы размером более 20–30 мкм из-за высокой скорости гравитационного осаждения уже нельзя рассматривать как аэрозольные.

Нижняя граница размеров аэрозольных частиц находится в области перехода молекулы к частице (0,0001–0,001 мкм). Всего 6–10 объединенных молекул уже обладают свойствами частицы, причем критерием перехода к аэрозолю служит не размер молекулярного кластера, а качественное различие в поведении молекул и аэрозольных частиц.

Приведем размерные диапазоны, характерные для природных и техногенных аэрозольных частиц.

Диапазоны размеров (мкм) некоторых аэрозольных частиц

Табачный дым	0,01–1
Хлорид аммония.....	0,1–3
Сернокислотный туман	0,3–5
Цветочная пыльца и споры	15–32
Атмосферный туман.....	2–50
Спрей из аэрозольного баллончика.....	1–50
Цементная пыль	3–100
Фотохимический аэрозоли.....	0,01–1
Аэрозоли дочерних продуктов радона	0,05–0,2
Первичные радиоактивные аэрозоли-продукты ядерных аварий, вовлекаемые в дальний перенос.....	0,1–0,7
Аэрозоли, образованные при ветровом подъеме с поверхности почвы ¹	3–10
Аэрозоли, образующиеся при горении.....	0,1–10
Радиоактивные аэрозоли в технологических помещениях АЭС	0,5–10

Как уже отмечалось, аэрозольные частицы редко бывают сферическими, поэтому целесообразно определить их характерный размер для последующей аппроксимации сферой. Например, можно рассмотреть проекцию частицы неправильной формы на плоскость и определить размер частицы как радиус (диаметр) окружности с такой же площадью, как и площадь проекции. Определенный таким образом размер называется *проективным*.

Часто весьма удобно определить размеры частиц по скорости осаждения (седиментации). Примем, что размеры всех частиц, имеющих одинаковые скорости осаждения, одинаковы независимо от их формы, фактических размеров и состава. Для этого введем следующие определения:

Аэродинамическим называется диаметр сферической частицы плотностью $\rho = 1 \text{ г/см}^3$, имеющей такие же аэродинамические показатели, как и рассматриваемая частица.

Стоксовским называется диаметр сферической частицы, имеющей такую же плотность и скорость осаждения, как и рассматриваемая частица.

¹ Исключая явления пыльных бурь, при которых возможен подъем более крупных частиц.

Нетрудно заметить, что аэродинамический и стоксовский диаметры связаны между собой следующим образом:

$$d_{aerodyn} = d_{St} \cdot \sqrt{\rho}. \quad (4)$$

Можно также сравнивать размеры частиц по измеренному отраженному излучению. В случае, если характеристики отраженных сигналов от двух частиц совпадают, считают, что их *оптические эквивалентные диаметры* одинаковы.

Для целей дозиметрии внутреннего облучения, для задач переноса аэрозольных частиц, разработки систем очистки газов и ряда других задач наиболее информативен аэродинамический диаметр. Для очень маленьких частиц определяют *термодинамический диаметр* аэрозольной частицы как диаметр частицы плотностью 1 г/см^3 , имеющей тот же коэффициент диффузии в воздухе при нормальных условиях, что и у данной частицы.

Масса сферической частицы пропорциональна кубу ее размера, а масса частицы неправильной формы – кубу стоксовского размера. Коэффициентом пропорциональности служит плотность частиц. Очевидно, что средняя величина плотности частицы, форма которой представляет собой выпуклое односвязное множество, не должна отличаться от плотности образующего ее вещества. В противном случае плотность аэрозольной частицы будет меньше, чем у исходного вещества.

В табл. 2 представлены значения плотности исходных веществ и образованных из них аэрозольных частиц (кажущаяся плотность). Подобные вариации плотности у частиц различного генезиса из-за разнообразия, сложности и недостаточной изученности процессов их образования не поддаются надежным расчетам, а определяются экспериментально.

Непредсказуемость в значительной мере характерна и для химического состава частиц, который так же, как и плотность, сильно зависит от условий образования аэрозолей. Однако в некоторых случаях химический состав аэрозолей удастся определить *a priori*. Так, при диспергировании однородного вещества или при объемной конденсации паров однокомпонентных веществ в отсутствие химических реакций состав аэрозолей не претерпевает изменений.

Плотность частиц в некоторых аэрозолях¹

Вещество	Плотность, г/см ³		Способ получения
	истинная	кажущаяся	
Au	19,3	0,2–8,0	Испарение в дуговом разряде
Ag	10,5	0,6–4,2	
CdO	6,5	0,2–2,7	
Hg	13,6	0,1–10,8	Нагревание
HgCl ₂	5,4	0,6–4,3	
MgO	3,6	0,2–3,5	Сжигание
Fe ₂ O ₃	5,3	0,3–3,5	Электросварка
NiO	7,5	0,4–4,6	
Cr ₂ O ₃	5,2	0,3–4,2	

В процессе гомогенной объемной конденсации паровой смеси двух или более веществ с различными температурами кипения вначале образуются кластеры и первичные частицы из самого нелетучего компонента, затем на них последовательно осаждаются все более летучие вещества. Так как концентрация и степень пересыщения паров флуктуируют в объеме, а скорость накопления молекул на растущих первичных частицах увеличивается, размеры этих частиц становятся неодинаковыми. Поэтому исходные химические компоненты фракционируют по размерам. Фракционирование химического состава исходного вещества имеет место и при гетерогенной объемной конденсации его паров на ядрах конденсации. Даже при одновременно происходящей коагуляции аэрозолей подобную трансформацию химического состава частиц в целом ряде случаев удастся предсказать. Типичным примером здесь служат процессы конденсационного образования аэрозолей при ядерных взрывах.

4.3. Распределение частиц по размерам

Монодисперсные аэрозоли в природе встречаются крайне редко. Подавляющее большинство аэрозолей содержат частицы различного размера. Ввиду того, что свойства аэрозоля сильно зависят от

¹ Басманов П.И. и др. Высокоэффективная очистка газов от аэрозолей фильтрами Петрянова. М.: Наука, 2003.

размера частиц, нахождение функции распределения частиц по размерам является важнейшей задачей.

Знание только начальных и центральных моментов функций распределений (среднего размера и дисперсии) позволяют делать последующие оценки и прогнозы свойств аэрозолей с приемлемой точностью лишь в некоторых случаях.

Обозначим плотность распределения случайной величины – размера аэрозольной частицы – через $f(r)$, и примем, что r_1 и r_2 – наименьший и наибольший радиусы частиц. Тогда функция распределения определяется как

$$F(r) = \int_{r_1}^r f(r) dr, \quad (5)$$

т.е. как вероятность того, что размер частиц примет значение меньше, чем заданное r .

По определению, средний радиус частиц

$$\bar{r} = \int_{r_1}^{r_2} r \cdot f(r) dr, \quad (6)$$

а медианный радиус r_0 находят из уравнения

$$\int_{r_1}^{r_0} f(r) dr = \int_{r_0}^{r_2} f(r) dr \quad (7)$$

или

$$\frac{1}{2} = \int_{r_1}^{r_0} f(r) dr. \quad (8)$$

Этих характеристик спектра размеров не всегда достаточно. Важно знать меру разброса размеров около среднего значения – центральный момент распределения. Он определяется как

$$\sigma^2 = \int_{r_1}^{r_2} (r - \bar{r})^2 f(r) dr. \quad (9)$$

Обращаем внимание, что характеристики спектра (6), (8) и (9) определены без использования информации о виде распределения.

На практике результаты измерений размеров представляются в виде гистограммы распределения. В этом случае средний размер частиц находят по формуле

$$\bar{r} = \frac{\sum n_i r_i}{\sum n_i}, \quad (10)$$

а дисперсию – по формуле

$$\sigma^2 = \frac{\sum_i n_i (r - r_i)^2}{\sum_i n_i - 1}, \quad (11)$$

где размеры n_i частиц попадают в интервал со средним размером r_i .

В случае гауссова распределения по размерам истинное значение радиуса частиц с вероятностью 0,684 попадает в интервал $r = \bar{r} \pm \sigma$.

Существует достаточно много эмпирических и полуэмпирических распределений, описывающих размеры как природных, так и искусственных аэродисперсных систем. Рассмотрим наиболее распространенные распределения.

Степенные распределения. К этой группе относится эмпирическое *распределение Юнге*, предложенное им для описания аэрозолей в свободной атмосфере. Плотность распределения Юнге

$$f(r) = -C_0 r^{-\nu}. \quad (12)$$

Здесь C_0 – постоянный коэффициент, определяемый из условий нормировки распределения и зависящий от средней концентрации частиц, а ν – показатель степени, изменяющийся, как правило, от 3 до 6 для различных условий измерения и размерных диапазонов. Ясно, что распределение Юнге не учитывает наличие максимума плотности распределения, всегда имеющегося у любого спектра размеров частиц. Оно лишь позволяет аппроксимировать спад $f(r)$ справа от максимума.

Нормальное распределение (распределение Гаусса) аэрозольных частиц по размерам встречается в природе редко (например, аэрозоль, дисперсная фаза которого состоит из спор некоторых растений). Распределение Гаусса хорошо аппроксимирует спектр размеров частиц, образующихся в некоторых *генераторах моно-*

дисперсных аэрозолей, которые используют для калибровки аэрозольных приборов и при испытаниях фильтров. Следует подчеркнуть, что понятие «монодисперсные аэрозоли» весьма условно: размеры таких частиц подчинены нормальному распределению с малым стандартным отклонением.

Нормальное распределение имеет вид

$$F(r) = \int_{-\infty}^r \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Sigma} e^{-\frac{(r-\bar{r})^2}{2\Sigma^2}} dr. \quad (13)$$

Математическое ожидание случайной величины r равно $\bar{r}$ (средний радиус частиц), а дисперсия равна Σ^2 .

Сделав замену $x = \frac{r - \bar{r}}{\sqrt{2}\Sigma}$, получим

$$F(r) = \frac{1}{2} \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{r - \bar{r}}{\sqrt{2}\Sigma} \right) \right),$$

где $\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z e^{-\zeta^2} d\zeta$ – функция ошибок. В математических справочниках приведены таблицы ее значений.

Построенное в вероятностных координатах

$$\xi = \frac{1}{2} \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{r - \bar{r}}{\sqrt{2}\Sigma} \right) \right), r$$

нормальное распределение является прямой линией.

Если большинство измеренных распределений частиц по размерам представить в координатах (ξ, r) , прямые линии мы вряд ли увидим. Однако при построении в координатах $(\xi, \ln r)$, т.е. при замене радиусов частиц величинами их логарифмов, некоторые экспериментальные данные линеаризуются. Это делает весьма удобным использование логарифмически нормального распределения по размерам.

Логарифмически нормальное распределение (ЛНР) часто используют при описании спектра размеров частиц как дисперсионного, так и конденсационного происхождения. В 1941 г. А.Н. Кол-

могоров решил теоретическую задачу о бесконечном дроблении частиц. Он предположил, что вероятность дробления не зависит от размера и показал, что в этом случае спектр размеров асимптотически стремится к ЛНР, плотность которого имеет вид

$$f(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \ln \sigma} \cdot r} e^{-\frac{(\ln r - \ln r_g)^2}{2 \ln^2 \sigma}}, \quad (14)$$

где r_g – средний геометрический радиус, а σ – стандартное геометрическое отклонение ($\sigma > 0$). Эти величины можно найти из анализа данных эксперимента, представленных в виде гистограммы распределения по размерам:

$$\ln r_g = \frac{\sum_i n_i \ln r_i}{\sum_i n_i}, \quad (15)$$

$$\ln \sigma = \left[\frac{\sum_i n_i (\ln r_g - \ln r_i)^2}{\sum_i n_i - 1} \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (16)$$

Плотность ЛНР представлена на рис. 3.

В отличие от распределения Гаусса плотность ЛНР ассиметрична. Но если отложить по оси абсцисс не величины радиусов, а их логарифмы, можно получить симметричный «колокол», аналогичный плотности нормального распределения. Размеры примерно

68,4 % всех частиц попадут в интервал от $\frac{r_g}{\sigma}$ до $r_g \sigma$.

При логарифмически нормальном распределении средний геометрический радиус равен медианному радиусу. Поэтому в дальнейшем, если это специально не оговорено, при записи плотности ЛНР будем использовать значение r_0 .

ЛНР обладает замечательным свойством, делающим это распределение очень удобным при вычислениях. Пусть визуально (например, с помощью микроскопа) определены размеры однородных сферических аэрозольных частиц. После обработки данных измерений было установлено, что счетное распределение частиц

подчинено ЛНР с параметрами r_0 , σ (это означает, что 50 % всех частиц имеет радиус меньше, чем r_0). Как будет распределена по размерам масса частиц, площадь поверхности и другие характеристики?

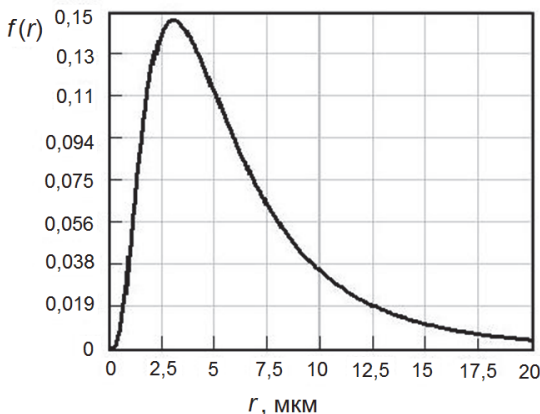


Рис. 3. Плотность логарифмически нормального распределения (медианный радиус $r_0 = 5$ мкм, стандартное геометрическое отклонение $\sigma = 2,0$)

Оказывается, что в случае ЛНР остальные характеристики частиц также подчинены логарифмически нормальному распределению с одним и тем же значением стандартного геометрического отклонения. Легко вывести формулу, выражающую связь между параметрами распределения по размерам:

$$r_x = r_0 \exp(p \ln^2 \sigma), \quad (17)$$

где x – индекс характеристики частиц, а p – параметр. Приведем значения параметра уравнения (17) для различных характеристик распределения по размерам.

Характеристики логнормального распределения по размерам и параметр p уравнения (17)

Счетный медианный радиус.....	0
Счетная мода (максимум плотности распределения)	-1
Средний арифметический радиус	1/2
Поверхностная мода.....	1
Среднекубический радиус.....	3/2
Поверхностный медианный радиус	2

Средний поверхностный радиус	5/2
Массовый медианный радиус	3
Массовый средний радиус	7/2

Допустим, что распределение по размерам подчинено ЛНР со счетным медианным радиусом $r_0 = 1$ мкм и $\sigma = 2$. Используя приведенные выше значения для различных характеристик распределения по размерам и формулу (17) найдем, что максимум плотности счетного распределения равен 0,62 мкм. Поверхностный медианный радиус (значение радиуса частицы, при котором суммарная поверхность всех частиц с меньшим радиусом равна поверхности всех частиц с большим радиусом) составляет 2,61 мкм, а массовый медианный радиус (масса всех более мелких частиц равна массе всех более крупных частиц) – 4,23 мкм.

Предположим, что на такие частицы осаждаются радиоактивные атомы. Если активность равномерно распределена по поверхности частиц, то, измерив ее величину, обнаружим, что 50 % активности связано с частицами радиусом менее 2,61 мкм (2,61 мкм – поверхностная медиана распределения). Для радиоактивных аэрозолей используется термин «активностный медианный радиус». Итак, в данном случае активностный медианный радиус равен 2,61 мкм.

В действительности, в большинстве практических случаев мы заранее не знаем, как радиоактивное вещество распределено в частице. Например, если частицы целиком состоят из радиоактивного вещества (предположим, что неактивный аэрозоль очень длительное время облучали нейтронами), то с помощью микроскопа можно определить счетный медианный радиус (1 мкм).

Тогда активностный медианный радиус будет равен 4,23 мкм, т.е. объемному медианному радиусу. Следовательно, знать активностный медианный радиус (диаметр) – еще не значит представлять себе структуру радиоактивного аэрозоля: для этого нужны дополнительные исследования. Кроме того, рассмотренные примеры являются идеализированными: реальный радиоактивный аэрозоль содержит частицы с разнообразным распределением активности по частицам, а в отобранных на фильтр пробах обязательно будут содержаться и неактивные пылевые частицы. Поэтому использование микроскопии (как оптической, так и электронной) и некоторых других методов недостаточно для изучения радиоактивных аэрозольных частиц.

Другие распределения по размерам. Реальный аэрозоль может состоять из суперпозиции нескольких унимодальных распределений. Некоторые промышленные пыли описываются эмпирическими распределениями, имеющими узкоспециальное применение. Распределение по размерам аэрозолей над крупными городами имеет три моды – так называемую нуклеационную (ядра Айткена), аккумуляционную и грубодисперсную. Если вторая и особенно первая превалируют в счетном распределении, то в массовом распределении аккумуляционная (0,3–0,5 мкм) и грубодисперсная (2–6 мкм) моды сопоставимы по величине, а вклад ядерной моды (0,03–0,04 мкм) пренебрежимо мал.

На рис. 4 приведены экспериментальные данные, иллюстрирующие сказанное о наличии трех мод распределения по размерам, для атмосферных аэрозолей ДПР.

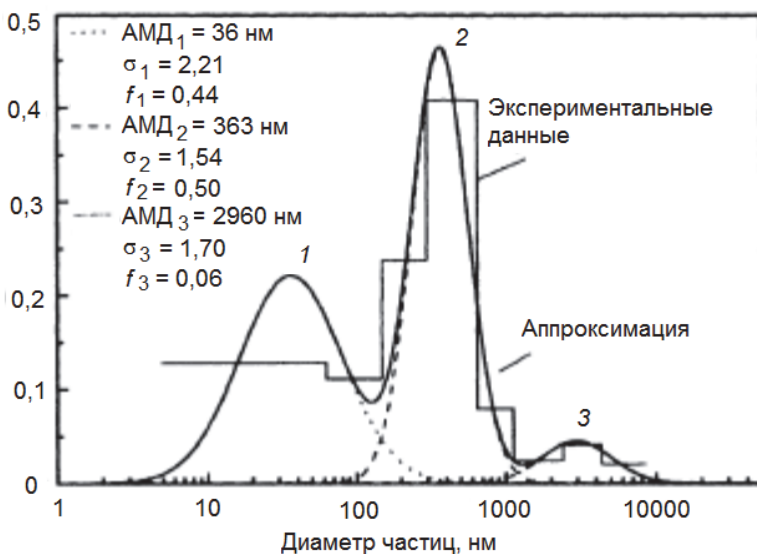


Рис. 4. Распределение активности по размерам аэрозолей дочерних продуктов радона в приземной атмосфере: $AMД_i$ – активностный медианный диаметр; σ_i – стандартное геометрическое отклонение; f_i – фракция ($i = 1, 2, 3$)¹

¹ Postendörfer J. et. al. Aerosol size distribution of the radon progeny in outdoor air. // J. Environ Radioactivity. 2000. 51. 37–48.

Контрольные вопросы к разд. 4

1. Счетная концентрация масляного тумана (частицы турбинного масла, плотность масла $0,9 \text{ г/см}^3$, средний диаметр $0,34 \text{ мкм}$) равна 10^6 см^{-1} . Найти массовую концентрацию аэрозоля.

2. Назовите факторы неопределенности при определении концентрации (объемной активности) аэрозолей.

3. Аэрозольными считают частицы в размерном диапазоне $R1-R2$. Назовите нижнюю и верхнюю границы диапазона и объясните, чем они обусловлены. Изменится ли размерный диапазон на другой планете с газовой оболочкой?

4. Дайте определения следующим размерам аэрозольных частиц: проективный, аэродинамический, термодинамический, стоксовский, оптический эквивалентный. Какие частицы называют изометрическими?

5. Размеры частиц описывается распределением Гаусса. Счетная мода распределения равна 1 мкм , стандартное отклонение равно $0,2$. Чему равны счетная и массовая медианы распределения?

6. Распределение радиоактивных частиц по размерам является логарифмически нормальным. Счетная мода распределения равна 1 мкм , стандартное геометрическое отклонение равно 2 . Чему равен активностный медианный диаметр в случаях, если: а) активность распределена по поверхности частиц тонким однородным слоем; б) активность равномерно распределена по объему частиц?

7. Распределение атмосферного аэрозоля имеет три моды. Назовите их. Что представляет собой ядерная мода?

8. Выведите формулу (17).

5. ПРОЦЕССЫ ОБРАЗОВАНИЯ АЭРОЗОЛЕЙ

5.1. Конденсация

Для того, чтобы аэрозольные частицы образовались из паров вещества, в среде должна существовать поверхность, на которой бы эти пары конденсировались. Такой поверхностью обладают кластеры, состоящие из нескольких случайно столкнувшихся молекул пара, ионы и ионные кластеры, а также маленькие частицы разнообразного генезиса, которые называют *ядрами конденсации*.

В случае, если конденсация пара происходит на молекулярных кластерах, образованных из молекул этого же пара, процесс образования аэрозолей называется *гомогенной нуклеацией*, а при конденсации пара на ядрах с другим составом – *гетерогенной нуклеацией*.

Гомогенная нуклеация возможна лишь при высокой степени пересыщения пара S , равной

$$S = \frac{p}{p_s(T)}, \quad (18)$$

где p – парциальное давление пара в газе, а $p_s(T)$ – давление насыщенного пара над поверхностью жидкости при температуре T .

Устойчивость образовавшихся при конденсации жидких частиц определяется, в частности, степенью пересыщения пара. Зависимость критического размера капли, при котором она находится в равновесии с паром, от степени пересыщения была получена Кельвином:

$$\ln S = \frac{4\sigma M}{\rho R T d^*}, \quad (19)$$

где σ – коэффициент поверхностного натяжения жидкости; M – молекулярная масса жидкости; ρ – ее плотность; R – газовая постоянная; d^* – критический диаметр капли.

Значение диаметра капли при заданной степени пересыщения сопоставляется на графике с ходом зависимости степени пересыщения от критического диаметра капли в соответствии с уравнением (19). В случае, если соответствующая точка окажется ниже равновесной кривой, капля будет испаряться, а выше – расти.

Конденсация происходит при более низких степенях пересыщения, если в обеспыленном воздухе содержатся положительные или отрицательные ионы. Это объясняется увеличением свободной энергии капли при наличии на ней заряда.

Гомогенная нуклеация в природе встречается крайне редко, так как ядра конденсации всегда присутствуют в воздухе, и для конденсации на них не требуется столь высокой степени пересыщения пара.

Размеры атмосферных ядер конденсации весьма разнообразны: от 10^{-3} до 2 мкм и более, а их концентрация находится в пределах

$10^2\text{--}10^6\text{ см}^{-3}$. Эти ядра образуются в результате природных процессов, таких как фотоокисление природных органических веществ, извержение вулканов, ветровой подъем пыли, лесные пожары, распыление морской соли и т.д.

Таблица 3

Процессы образования конденсационных аэрозолей

Процесс	Результат
Подъем теплого влажного воздуха в холодные верхние слои атмосферы	Образование облаков в свободной атмосфере
Смешивание потока теплых паров веществ с обеспыленным холодным воздухом, не содержащим ионы	Получение аэрозолей в лаборатории
Быстрое адиабатическое расширение пара и его конденсация на ионах, образовавшихся при прохождении ионизирующего излучения	Регистрация ядерных излучений в камере Вильсона
Конденсация водяного тумана на частицах дыма йодида серебра	Искусственное образование дождя из облаков за счет добавки льдообразующих ядер
Медленная конденсация пара на искусственно созданных ядрах конденсации (ионах или очень мелких частицах)	Генерация монодисперсных аэрозолей
Химическое взаимодействие газов или паров, приводящее к образованию веществ с высокими степенями пересыщения в данных условиях	Образование сернокислотных туманов, смогов
Горение и пиролиз	Образование разнообразных аэрозолей (сажа, частицы некоторых металлов)
Электросварка	Образование аэрозолей из окислов металлов
Воздействие видимого или ультрафиолетового излучения на пары веществ	Получение дымов окиси железа для лабораторных исследований

На ход конденсационного процесса образования аэрозольных частиц оказывает влияние химический состав и растворимость ядер конденсации. Пар, который конденсируется на растворимых ядрах, растворяет их, изменяя тем самым свойства капли-зародыша. Примером служит конденсация паров воды на частицах поваренной соли. Вначале частица состоит из насыщенного раствора NaCl , а

при дальнейшей конденсации водяного пара состав капли все менее отличается от состава чистой жидкости.

Присутствие растворенного вещества в зародышах делает возможным конденсацию пара даже при относительной влажности менее 100 %, как и при наличии ионов. При этом может существовать стабильная капля раствора, размер которой зависит только от массы растворенного вещества и от величины $\frac{p'}{p_s(T)}$, где p' – давление пара над каплей раствора.

Характеристики аэрозольных частиц, образующихся при конденсации пара на нерастворимых ядрах конденсации, сильно зависят от свойств поверхности ядра: легко смачиваемые и несмачиваемые поверхности частиц-зародышей по-разному влияют на динамику роста аэрозольных частиц.

В табл. 3 перечислены некоторые процессы, приводящие к образованию естественных и искусственных аэрозолей конденсационного происхождения.

5.2. Диспергирование

Диспергирование – переход жидких и твердых тел в аэрозольное состояние при их механическом измельчении (дроблении). Наиболее известным способом получения диспергационных аэрозолей является распыление жидкостей.

В процессе *пневматического (аэродинамического) распыления* вытекающая из сопла жидкость дробится высокоскоростным газовым потоком. Метод широко используется для получения аэрозолей с жидкой дисперсной фазой – лекарственных, дезинфицирующих, инсектицидных и др. Спектр образующихся при этом размеров капель очень широк: от 1 до 50 мкм. Для того, чтобы возвращать крупные капли в исходный раствор, в конструкциях распылителей применяют различные отражающие перегородки. С помощью *дискового распыления*, в которых жидкость подается на быстро вращающийся диск и сбрасывается с него в виде мелких капелек, можно получить почти одинаковые частицы, диаметр которых обратно пропорционален угловой скорости вращения. При *гидродинамическом распылении* жидкость продавливается под

большим давлением через сопло. Этот принцип реализован в центробежной форсунке с вихревой камерой, которая применяется в двигателях внутреннего сгорания.

В процессе *электрогидродинамического распыления* слабо проводящая жидкость, вытекающая из дозирующего сопла, находящегося под постоянным высоким электрическим потенциалом, распыляется за счет сил отталкивания одноименных электрических зарядов на мелкие капли. Заметим, что этот процесс аналогичен процессу получения волокнистых фильтрующих материалов методом электроформования (электроспиннинга). В последнем жидкость представляет собой полимерный раствор, реологические свойства которого не позволяют вытекающей струе дробиться на капли, в результате чего после испарения раствора полимера образуется волокно. Методом электроформования производятся все фильтрующие материалы – ФП (фильтры Петрянова), широко используемые для анализа аэрозолей и в средствах защиты от аэрозолей.

Аэрозоли образуются не только при распылении жидкостей, но и из растворов и суспензий. Испарение растворителя происходит довольно быстро, особенно если его смешивать с горячим воздухом. Таким методом получают тонкодисперсные аэрозоли хлорида натрия, полистирола, метиленового голубого, а также монодисперсные аэрозоли латекса из суспензий, используемые для испытаний фильтрующих материалов, калибровки измерительных приборов и др.

При измельчении твердых тел или при распылении порошков образуются пылевые аэрозоли. Большинство взвешенных в газе пылевых частиц представляют собой агрегаты неправильной формы, состоящие из нескольких более мелких частиц. Ветер над поверхностью почвы поднимает облака пыли, в составе которой встречаются очень мелкие частицы, вовлекающиеся в глобальный атмосферный перенос. Например, пыль из Сахары попадает в атмосферу Западной Европы и Атлантического океана.

Ударные волны, создаваемые с помощью взрывчатых веществ, также дробят твердые тела на мелкие частицы. Образование аэрозолей возможно и при очень быстром разрушении твердых тел выделяющимися внутри них газами. По-видимому, при извержениях вулканов именно этот эффект ведет к образованию большого количества тонкодисперсной пыли.

5.3. Особенности образования радиоактивных аэрозолей

Как и неактивные, радиоактивные аэрозоли также образуются под действием двух основных механизмов – конденсации и диспергирования. Вместе с тем существуют некоторые особенности их образования.

Конденсационные аэрозоли образуются вследствие диффузионного осаждения атомарных продуктов распада инертных газов осколочного происхождения (Xe, Kr) и летучих радиоактивных продуктов (I, Br) на атмосферных ядрах конденсации, всегда находящихся в воздухе. Инертные радиоактивные газы и летучие радионуклиды попадают в атмосферу практически на всех стадиях производства, использования и утилизации ядерного топлива.

Образованные при этом аэрозольные частицы состоят из неактивных частиц-носителей, на поверхности которых находятся радиоактивные вещества. Отметим, что так же образуются и радиоактивные аэрозоли полония (^{210}Po), свинца (^{212}Pb , ^{214}Pb) и висмута (^{212}Bi , ^{214}Bi), представляющие собой альфа-активные дочерние продукты естественных радионуклидов радона (^{222}Rn) и торона (^{220}Rn).

Основная часть активности адсорбируется на частицах субмикронного размерного диапазона. Формирование активностного распределения частиц по размерам зависит от спектра размеров ядер конденсации и вероятности аккомодации радиоактивных атмосферных примесей на неактивные частицы. В частности, различие в вероятностях аккомодации является причиной того, что естественные радиоактивные аэрозоли дочерних продуктов радона практически всегда содержат более мелкие частицы, чем аэрозоли осколочного происхождения, образованные при осаждении атомарных продуктов распада инертных газов криптона и ксенона.

Конденсационный аэрозоль теоретически может получиться при спонтанной конденсации пересыщенного радиоактивного пара. Такой пар может образоваться при гипотетической аварии с разрушением и испарением жидкометаллического теплоносителя или активной зоны реактора. Однако даже при крупнейшей ядерной аварии на Чернобыльской АЭС 1986 г в атмосфере не были обнаружены частицы конденсационного происхождения, состоящие целиком из осколочных радионуклидов.

Второй основной механизм образования радиоактивных аэрозолей – *диспергирование* радиоактивного материала, например дис-

пергирование активной зоны, отрыв частиц с загрязненных поверхностей технологических коммуникаций, почвы, зданий, растительных и лесных покровов под действием воздушных потоков; тепловой, химический или ядерный взрыв радиоактивных веществ; механическое распыление радиоактивных жидкостей, измельчение твердых материалов, резка отработанных тепловыделяющих элементов и других твердых радиоактивных отходов.

Помимо процессов конденсации и диспергирования радиоактивные аэрозоли образуются еще за счет других специфических механизмов. В их число входит *радиоактивный распад* и *активация*. В результате радиоактивного распада вещества, находящегося на аэрозольных частицах, образуется дочерний изотоп. Если этот изотоп также нестабилен, образуется новый радиоактивный аэрозоль. Например, вблизи разрушенного реактора IV блока Чернобыльской АЭС в приземном слое воздуха через довольно продолжительное время после аварии появились частицы, содержащие ^{241}Am . Эти аэрозоли образовались в результате распада ^{241}Pu , находящегося на тех же аэрозольных частицах-носителях. Таким образом, при сохранении формы частицы изменился ее нуклидный состав.

При активации неактивные аэрозольные частицы, попадая в поле ионизирующего излучения, вследствие ядерной реакции могут стать радиоактивными. Например, воздушная пыль в экспериментальных каналах ядерного реактора может активироваться тепловыми нейтронами по (n , γ)-реакции. При этом продукты коррозии конструкционных материалов реактора, находящиеся в мощных нейтронных полях, уносятся в пылевидном состоянии воздушным потоком и образуют радиоактивные аэрозоли, содержащие радионуклиды кобальта (^{60}Co), железа (^{59}Fe), марганца (^{54}Mn), хрома (^{51}Cr) и др. Радионуклид ^{99}Mo , также находящийся в аэрозольных частицах, может иметь как осколочное, так и активационное происхождение.

Специфическим механизмом образования радиоактивных аэрозолей является явление самопроизвольного отрыва частиц, содержащих полоний, с поверхности его твердых препаратов в газовую среду под действием ядерной и агрегатной отдачи, возникающей при радиоактивном распаде атомов. Установлено, что из препарата полония, нанесенного на металлические подложки, уносится около 0,04 % полония в день при атмосферном давлении, а интенсивность уноса повышается при снижении давления.

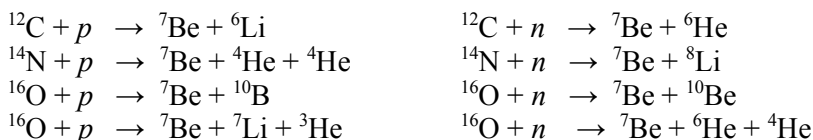
Скорость образования и концентрация космогенных нуклидов в атмосфере¹

Радионуклид	Скорость образования на единицу площади, ат./см ² · с	Количество образующегося изотопа за год, ПБк	Глобальный запас, ПБк	Относительная доля в тропосфере	Концентрация в тропосфере мБк/м ³
³ H	2500	72	1275	0,004	1,4
⁷ Be	810	1960	413	0,11	12,5
¹⁰ Be	450	0,000064	230	0,0023	0,15
¹⁴ C	25000	1,54	12750	0,016	56,3
²² Na	0,86	0,12	0,44	0,017	0,0021
²⁶ Al	1,4	0,000001	0,71	$7,7 \times 10^{-8}$	$1,5 \times 10^{-8}$
³² Si	1,6	0,00087	0,82	0,00011	0,000025
³² P	8,1	73	4,1	0,24	0,27
³³ P	6,8	35	3,5	0,16	0,15
³⁵ S	14	21	7,1	0,08	0,16
³⁶ Cl	11	0,000013	5,6	6×10^{-8}	$9,3 \times 10^{-8}$
³⁷ Ar	8,3	31	4,2	0,37	0,43
³⁹ Ar	56	0,074	28,6	0,83	6,5
⁸¹ Kr	0,01	$1,7 \times 10^{-8}$	0,005	0,82	0,0012

¹ Данные Научного комитета ООН по действию атомной радиации, UNSCEAR, 2000. Данные Научного комитета ООН по действию атомной радиации, UNSCEAR, 2000.

Естественные радиоактивные аэрозоли трития (^3H), бериллия (^7Be), серы (^{35}S), фосфора (^{32}P , ^{33}P) образуются в верхних слоях атмосферы при взаимодействии протонов и нейтронов высокоэнергетического космического излучения со стабильными химическими элементами, присутствующими в земной атмосфере.

Например, ^7Be ($T_{1/2} = 53,3$ сут) образуется по следующим реакциям:



Образовавшиеся атомы ^7Be присоединяются к субмикронным ядрам конденсации морского и континентального происхождения. Измерение характеристик аэрозолей ^7Be помогает изучать атмосферные процессы, такие как глобальный перенос аэрозолей и время их нахождения в тропосфере.

В табл. 4 приведены скорости образования, концентрации и содержания космогенных радионуклидов в атмосфере Земли.

Контрольные вопросы к разд. 5

1. Объясните различие между процессами гомогенной и гетерогенной нуклеации.
2. Как можно увеличить степень пересыщения пара?
3. Постройте график уравнения Кельвина (19) для водяного пара (коэффициент поверхностного натяжения равен 72 дин/см, плотность – 1 г/см³, температура составляет 20 °C).
4. Назовите источники атмосферных ядер конденсации.
5. За счет какого процесса образования аэрозолей регистрируется излучение в камере Вильсона?
6. Разделите перечисленные процессы образования аэрозолей на конденсационные и диспергационные: электросварка, распыление пульверизатором, горение, взрыв, сильный ветер над океаном, образование аэрозолей дочерних продуктов радона.
7. Объясните роль ядер конденсации при стимулировании выпадения атмосферных осадков.

8. Выделите в списке конденсационные радиоактивные аэрозоли: ^{137}Cs , ^{129}I , ^{239}Pu , ^{241}Am , ^{212}Pb , ^{103}Ru , ^{59}Fe , ^7Be .

9. Как будут распределены диспергационные аэрозольные частицы по размерам при продолжительном измельчении исходного вещества в шаровой мельнице?

10. Почему размеры аэрозольных частиц, содержащих ^{241}Pu и ^{241}Am , одинаковы?

6. СВОЙСТВА И ПОВЕДЕНИЕ АЭРОЗОЛЕЙ

6.1. Трансформация размеров аэрозольных частиц

Частицы, взвешенные в газовой среде, постоянно подвержены изменениям под действием внешних и внутренних сил. В аэродисперсных системах непрерывно протекают процессы коагуляции, седиментации, испарения и т.д. Поэтому аэрозоль, образованный в результате какого-либо процесса, со временем претерпевает существенные трансформации. Характерный временной масштаб изменений может составлять величины от нескольких секунд до нескольких десятков лет. Измеряя характеристики аэрозоля, но не зная его источников, невозможно определить время появления аэрозоля и его первоначальные параметры.

Динамика изменения концентрации, размеров и состава атмосферных и промышленных аэрозолей определяется различными физико-химическими процессами, среди которых определяющую роль играют гравитационное осаждение, диффузия и коагуляция частиц.

Гравитационное осаждение. Под действием силы тяжести все аэрозольные частицы оседают, а скорость гравитационного осаждения определяется силой сопротивления движущейся аэрозольной частицы в газовой среде. Формулу для расчета силы сопротивления впервые получил Стокс. В случае, если размеры частиц сопоставимы со средней длиной свободного пробега газовых молекул ($\lambda = 0,07$ мкм), в расчетах по формуле Стокса необходимо учесть поправку Каннингема C_{Kn} на скольжение, которую также называют *коэффициентом сопротивления Милликена*. Формула Стокса (сила сопротивления потоку в несжимаемом газе при малых числах Рейнольдса) выглядит следующим образом:

$$F = \frac{3\pi\mu v d}{C_{Kn}}, \quad (20)$$

где μ – вязкость газа; а v – скорость частицы.

В табл. 5 приведены значения C_{Kn} для различных размеров частиц силикатной пыли ($\rho = 2,65 \text{ г/см}^3$) при нормальных условиях. Эти значения вычислены по формуле

$$C_{Kn} = 1 + \frac{2\lambda}{d} \left(A + Qe^{-\frac{bd}{2\lambda}} \right), \quad (21)$$

где константы $A = 1,257$; $Q = 0,4$; $b = 1,1$.

Таблица 5

Поправка Каннингема на скольжение в зависимости от диаметра частиц

$d, \text{ мкм}$	10	1	0,1	0,01	0,001
C_{Kn}	1,018	1,176	3,015	23,775	232,54

Как следует из табл. 5, эффект скольжения газовых молекул необходимо принимать во внимание уже в субмикронном размерном диапазоне.

Уравнение движения аэрозольной частицы массой m , движущейся со скоростью v в поле силы тяжести (u – скорость газовой среды вблизи частицы), записывается в виде

$$m \frac{d\vec{v}}{dt} = 6\pi\mu \frac{r}{C_{Kn}} (\vec{v} - \vec{u}) + m\vec{g}, \quad (22)$$

решив которое, можно получить, что установившаяся скорость гравитационного осаждения

$$v_g = \tau g C_{Kn}, \quad (23)$$

где

$$\tau = \frac{2}{9} \rho_p \frac{r^2}{\mu} - \quad (24)$$

время релаксации частицы; ρ_p – ее плотность. Время релаксации – время, за которое частица приспосабливается к новым условиям движения. Так, если начальная скорость частицы при входе в газовую среду равна v_0 , то до ее полной остановки относительно среды

она пройдет расстояние $v_0 \cdot \tau$. Такой пройденный частицей путь называется *расстоянием торможения (stop distance)*, или пробегом.

В табл. 6 приведены скорости гравитационного осаждения, определенные по формуле (23), и времена релаксации частиц.

Таблица 6

**Скорости гравитационного осаждения сферических частиц
плотностью 1 г/см³ (температура и давление нормальные)**

Диаметр частиц, мкм	v_g , см/с	Время релаксации, с
0,05	$3,76 \times 10^{-5}$	$4,00 \times 10^{-8}$
0,1	$8,97 \times 10^{-5}$	$9,15 \times 10^{-8}$
0,5	$1,00 \times 10^{-3}$	$1,03 \times 10^{-6}$
1,0	$3,50 \times 10^{-3}$	$3,57 \times 10^{-6}$
5,0	$7,76 \times 10^{-2}$	$7,86 \times 10^{-5}$
10	$3,03 \times 10^{-1}$	$3,09 \times 10^{-4}$

Скорость гравитационного осаждения субмикронных частиц ничтожна по сравнению со скоростью диффузионного осаждения, в то время как частицы диаметром более 10 мкм в спокойной атмосфере довольно быстро выводятся из рассматриваемого объема.

Именно повышение скорости осаждения частиц под действием силы тяжести ведет к ограничению шкалы размеров аэрозольных частиц справа. Граничный размер в зависимости от проявления внешних факторов, таких как скорость ветра, тепловые градиенты и др., находится в диапазоне 10–30 мкм. Более крупные частицы уже нельзя считать аэрозольными.

Диффузия аэрозольных частиц. *Диффузией* называют самопроизвольный процесс переноса вещества, приводящий к установлению равновесного распределения концентраций в результате беспорядочного теплового движения частиц в пространстве.

Частицы при столкновении с поверхностями осаждаются на них, поэтому в непосредственной близости от таких поверхностей концентрация частиц равна нулю. Таким образом, перенос аэрозольных частиц к поверхностям в отсутствии источников приводит к постепенному снижению концентрации аэрозолей в замкнутом объеме. Это особенно важно принимать во внимание, если рассматриваемый объем невелик.

Хаотическое тепловое движение аэрозольных частиц вызывает их направленный перенос в случае, если имеется градиент концентраций.

Диффузия вещества описывается законами Фика. Согласно первому закону, диффузионный поток через единичную поверхность пропорционален градиенту концентрации:

$$\vec{J} = -D\vec{\nabla}C, \quad (25)$$

где оператор градиента в декартовых координатах записывается в виде

$$\vec{\nabla} = \frac{\partial}{\partial x} \vec{i} + \frac{\partial}{\partial y} \vec{j} + \frac{\partial}{\partial z} \vec{k}.$$

Коэффициент пропорциональности D в формуле (25) называется *коэффициентом диффузии*.

Второй закон Фика – линейное дифференциальное уравнение в частных производных второго порядка, описывающее изменение концентрации аэрозолей:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D\Delta C, \quad (26)$$

где Δ – оператор Лапласа, в декартовых координатах имеющий вид

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}.$$

Можно получить, что коэффициент диффузии

$$D = kT \frac{C_{Kn}}{6\pi\mu r} = BkT, \quad (27)$$

где B – *подвижность* частицы, численно равная скорости, сообщаемой частице под действием постоянной единичной силы (см. формулу (20)).

Из первого закона Фика следует, что среднеквадратичное смещение s^2 аэрозольной частицы от начального положения пропорционально времени. Например, для случайного трехмерного блуждания частицы $s^2 = \frac{4}{\pi}Dt$.

Решая уравнение (26) с различными начальными и граничными условиями, соответствующими изучаемому процессу, можно получить ряд важных для практики результатов. Один из них – формула для расчета диффузионного осаждения монодисперсных аэрозолей в пробоотборной трубке длиной L и радиусом R :

$$\frac{C_{out}}{C_{in}} = 1 - 2,56\varphi^{2/3} + 1,2\varphi + 0,177\varphi^{4/3}, \quad (28)$$

где C_{out} и C_{in} – концентрация аэрозолей на выходе и на входе пробоотборной трубки, соответственно; $\varphi = \frac{DL}{uR^2}$; u – скорость потока.

На явлении диффузии аэрозолей основан принцип работы *диффузионной батареи*, предназначенной для анализа размеров частиц в диапазоне до 0,2 мкм. В частности, ступень диффузионной батареи может состоять из нескольких сеток. Размер частиц определяют по известной зависимости коэффициента проскока аэрозоля, связанного с коэффициентом диффузии, от числа сеток (см. ГОСТ Р 8.755-2011).

Диффузионное осаждение аэрозолей на субмикронных волокнах определяет эффективность фильтра по отношению к частицам диаметром менее 0,5 мкм при скоростях фильтрации порядка нескольких сантиметров в секунду.

Помимо чисто диффузионного движения частиц, часто имеет место перенос аэрозольных частиц вместе с воздушным потоком (конвективный перенос). Тогда в правой части уравнения (26) появляется конвективный член, а новое уравнение уже описывает процесс конвективной диффузии:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D\Delta C - u\nabla C. \quad (29)$$

Это уравнение можно преобразовать к виду

$$(\vec{U}\vec{\nabla})C = \frac{1}{Pe}\Delta C, \quad (30)$$

где

$$Pe = u_0L/D - \quad (31)$$

безразмерный параметр (число Пекле), характеризующий соотношение между диффузией и конвекцией; u_0 – средняя скорость си-

стемы; L – характерный размер. При малых числах Пекле преобладает диффузия, а при больших – конвективный перенос. Очевидно, многое зависит от выбора L . Это может быть длина помещения, диаметр трубы, диаметр волокна фильтра и т.д., т.е. то расстояние, на котором ощутимо изменение концентрации.

Коагуляция. С увеличением концентрации частиц вероятность их столкновения друг с другом возрастает. В результате столкновений частицы слипаются или сливаются. Этот процесс называют *коагуляцией*.

Тепловая (броуновская) коагуляция происходит из-за множественных столкновений аэрозольных частиц друг с другом в результате броуновской диффузии. В простейшем случае монодисперсных сферических частиц радиусом r изменение концентрации C во времени пропорционально квадрату концентрации:

$$\frac{dC}{dt} = -K_0 C^2, \quad C(0) = C_0. \quad (32)$$

Интегрирование (32) дает

$$\frac{1}{C(t)} - \frac{1}{C_0} = K_0 t, \quad (33)$$

где $C(t)$ – концентрация аэрозолей в момент времени t ; C_0 – начальная концентрация; $K_0 = 8\pi r D$ – константа коагуляции; D – коэффициент диффузии аэрозольных частиц. Нетрудно заметить, что по форме уравнение (33) совпадает с уравнением, описывающим процесс рекомбинации ионов.

Значения констант коагуляции для монодисперсных частиц при нормальных условиях приведены в табл. 7.

Так как реальный аэрозоль всегда полидисперсный, форма частиц может сильно отличаться от сферической и имеются дополнительные источники и стоки аэрозолей, количественное описание эволюции аэродисперсной системы представляет собой очень сложную проблему, в общем виде не решенную до сих пор. Кроме того, сами частицы могут взаимодействовать друг с другом на расстоянии, усиливая или ослабляя скорость коагуляционных процессов. Например, при кулоновском взаимодействии между частицами константа коагуляции униполярно заряженных частиц меньше, чем у незаряженных или у заряженных противоположными знаками.

**Константы коагуляции монодисперсных сферических частиц
при нормальных условиях (20 °С, 1 атм.)**

Диаметр частиц, мкм	Константа коагуляции, см ³ /с
0,01	$6,68 \times 10^{-9}$
0,05	$1,49 \times 10^{-9}$
0,1	$8,59 \times 10^{-10}$
0,5	$3,96 \times 10^{-10}$
1	$3,47 \times 10^{-10}$
5	$3,07 \times 10^{-10}$
10	$3,02 \times 10^{-10}$

На динамику процесса коагуляции оказывает влияние сила тяжести, турбулентность атмосферы, звуковые колебания и т.д.

Коагуляционные процессы часто приводят аэродисперсную систему к квазистационарному состоянию, при котором распределение частиц по размерам становится устойчивым. Поэтому «свежий» аэрозоль практически всегда отличается от «старого», прошедшего к своему текущему состоянию в результате коагуляции.

Помимо описанных физико-химических свойств и характеристик аэрозолей очень важными являются их *оптические свойства*, изучение которых является самостоятельным разделом аэрозольной науки. Оптические свойства зависят, с одной стороны, от размеров, формы и природы частиц, а с другой – от длины волны электромагнитного излучения (света). На основе оптических свойств аэрозолей объясняются такие многие природные явления, как цвета неба днем и на закате, радуга, гало. Свойства аэрозолей, связанные с рассеянием и поглощением излучений, используются в народном хозяйстве и военной технике. В рамках настоящего пособия эти свойства не рассматриваются.

6.2. Электрические свойства аэрозолей

Аэрозольным частицам свойственно наличие на них положительных и отрицательных электрических зарядов, число которых на отдельной частице может составлять от единиц до нескольких десятков и даже сотен элементарных. Функция распределения за-

рядов на частицах зависит от природы аэрозолей и влияет на поведение как самих частиц, так и аэродисперсной системы в целом.

Основными причинами появления электрических зарядов на частицах нерадиоактивных аэрозолей являются либо различного рода процессы перераспределения зарядов на границе раздела фаз при образовании аэрозолей при диспергировании веществ, либо захват частицами газовых ионов из окружающей атмосферы. Последний механизм зарядки аэрозольных частиц обусловлен их случайными столкновениями с газовыми ионами обоих знаков. В этом случае частицы приобретают в среднем стационарный, но сильно флуктуирующий по величине и знаку электрический заряд. Средняя абсолютная величина заряда пропорциональна квадратному корню из радиуса частицы.

В результате столкновения с ионами в аэрозолях постоянно происходит перезарядка частиц, приводящая к установлению в системе стационарного распределения электрических зарядов. Равновесное распределение электрических зарядов для частиц в диапазоне размеров 0,01–2 мкм может быть описано распределением Больцмана

$$M_i = M_0 \frac{i}{\sqrt{2\pi r k T}} \exp\left(-\frac{i^2 e^2}{2 r k T}\right), \quad (34)$$

где M_i – число частиц с i элементарных зарядов; M_0 – общее число частиц; r – радиус частиц; k – постоянная Больцмана; T – абсолютная температура.

В диапазоне размеров аэрозольных частиц 0,1–10 мкм заряды не превышают десяти элементарных, а частицы меньшего размера остаются практически нейтральными. Такая биполярная зарядка типична для частиц атмосферного аэрозоля, ионизация в котором обусловлена естественной радиоактивностью (радон и его дочерние продукты, солнечная радиация, космическое излучение).

Время, требуемое для достижения в аэрозоле с концентрацией M_T половины равновесного заряда, оценивается по формуле

$$t_{1/2} = \frac{0,693 M_T}{4 q_i}, \quad (35)$$

где q_i – скорость ионообразования. В атмосфере величина q_i составляет 10^4 ион/см³·с, поэтому даже при концентрации атмосферных

аэрозолей $5 \cdot 10^4 \text{ см}^{-3}$ для установления равновесия необходимо около 30 мин.

Электризация частиц возникает также при механическом распылении жидкостей и диспергировании твердых тел, однако в результате захвата газовых ионов среднее значение заряда на частицах со временем снижается до малого уровня, типичного для атмосферного аэрозоля. При росте ионизации время жизни первоначального заряда частиц уменьшается.

При изучении зарядов на *радиоактивных аэрозолях* следует учитывать две особенности. Первое – повышенная ионизация газовой среды под действием ионизирующего излучения, создаваемого радиоактивным веществом, которое содержится в частицах. Второе – явление положительной униполярной зарядки аэрозольных частиц, присущее α - и β -активным аэрозолям.

В обычных условиях для α -активного аэрозоля с объемной активностью $3,7 \cdot 10^5 \text{ Бк/м}^3$ (10^{-8} Ки/л) равновесное распределение зарядов устанавливается всего за несколько секунд.

Униполярная положительная зарядка аэрозольных частиц происходит в результате вторичной эмиссии электронов, которые вырываются из аэрозольных частиц α - и β -частицами при распаде радиоактивных атомов. Возникающий при этом на частицах положительный заряд в ионизированной атмосфере частично нейтрализуется за счет диффузии ионов из окружающей среды и осаждения их на частицах. В результате этих процессов в аэрозоле также устанавливается стационарное распределение зарядов на частицах, смещенное в область положительных зарядов. Величина смещения стационарного распределения заряда Δi , как следует из анализа баланса скоростей эмиссии электронов и диффузии ионов к частицам при равномерной концентрации ионов в газовой среде, равняется

$$\Delta i = \frac{i_{\alpha} q k T}{4 \pi D_i e^2 C_i}, \quad (36)$$

где i_{α} – среднее число электронов, теряемых аэрозольной частицей при α -распаде; q – α -активность аэрозольной частицы; D_i – коэффициент диффузии ионов; e – элементарный электрический заряд; C_i – концентрация ионов.

Для аэрозолей полония такая зависимость наблюдается при объемной активности $(0,7-5) \cdot 10^{-8}$ Ки/л и при α -активности аэрозольных частиц от $1 \cdot 10^{-16}$ до $3 \cdot 10^{-14}$ Ки.

Смещение среднего равновесного заряда пропорционально α -активности аэрозольных частиц. β -активные «горячие» частицы с индивидуальной активностью более 0,1 Бк и размером более 0,1 мкм за счет непрерывной эмиссии ядерных или вторичных электронов приобретают довольно высокие положительные заряды (порядка десятков и более элементарных). В турбулентной среде заряд пропорционален размеру частиц, а в неподвижной – логарифму размера. Такая особенность радиоактивных аэрозолей может играть заметную роль при осаждении частиц в электрическом поле. При скоростях фильтрации до 40–50 см/с на эффективность улавливания аэрозолей волокнистыми фильтрами существенно влияет заряд аэрозольных частиц или волокон. Для повышения эффективности электрофильтров специально осуществляют предварительную зарядку аэрозольных частиц.

Электрический заряд является характеристикой, определяющей поведение аэрозольных частиц вблизи других тел и во внешних электрических полях. Также существенны величины электропроводности и диэлектрической проницаемости материала частиц, определяющие время релаксации и степень поляризации в ней электрических зарядов. Первая характеристика чаще всего обусловлена малыми примесями подвижных носителей заряда в веществе частицы и существенно возрастает при росте влажности газовой среды (особенно сильно вблизи точки росы), а вторая задается основными компонентами этого вещества и слабо зависит от влажности газа. В подавляющем большинстве случаев время релаксации электрического заряда в частицах достаточно мало, и в первом приближении их можно считать хорошо проводящими.

6.3. Аэрозоли, содержащие газообразные продукты

Дисперсионная среда аэрозоля может содержать вещества, находящиеся как в составе аэрозольных частиц, так и в виде газообразных соединений. На это следует обращать особое внимание, если содержание вредных летучих химических и радиоактивных веществ превышает предельно допустимые уровни. От присутствия

подобных веществ зависит степень поражающего воздействия на живые организмы. Наличие газообразных компонентов опасных веществ сильно усложняет технологию очистки газов (воздуха) из-за необходимости применения комплексных средств одновременного улавливания аэрозолей и газообразных веществ. Именно поэтому для защиты органов дыхания в данных случаях применяются противогазы и респираторы, снаряженные различными аэрозольными фильтрами и сорбентами.

Многие аэрозоли сопровождаются газообразными веществами, которые находятся в определенном равновесии с веществами, содержащимися в аэрозольных частицах, и количество их зависит в основном от летучести вещества и температуры окружающей среды. К таким аэрозольям, в первую очередь, относятся аэрозоли, содержащие отравляющие вещества (ОВ), ядохимикаты, летучие органические соединения и некоторые радиоактивные изотопы. Металлические аэрозольные частицы могут сопровождаться летучими соединениями металлов.

В ГОСТ 12.1.005-88 приведены предельно допустимые содержания вредных веществ в воздухе. Специально выделены вещества, для которых в аэрозолях особенно значимо их газообразное содержание. Среди приведенных веществ следует выделить аэрозоли, содержащие ртуть. ПДК таких аэрозолей составляет $0,005 \text{ мг/м}^3$. Помимо этого, сама ртуть в воздухе при обычных условиях находится в виде паров, предельная среднесменная допустимая концентрация которых также составляет $0,005 \text{ мг/м}^3$, а максимальная – $0,01 \text{ мг/м}^3$.

В случае радионуклидов, для которых ПДК, выраженные в массовых единицах, в несколько сотен тысяч ниже ПДК химически вредных веществ, наличие газообразных продуктов в аэрозольных системах приобретает еще большую роль. В радиоактивных аэрозолях существенное значение имеют радиоактивные вещества с очень низкой упругостью паров, содержание которых в воздухе превышает допустимую объемную активность (ДОА) при обычных температурах. Особенно это касается таких α -активных нуклидов, как U, Pu, Po, Np, Cm, Am и др., несмотря на то, что они относятся к металлам с чрезвычайно низкой упругостью паров.

В табл. 8 приведены свойства некоторых химических неорганических соединений долгоживущих α -активных нуклидов, темпера-

тура плавления и кипения которых ниже 100 °С, и, соответственно, упругости паров при насыщении в нормальных условиях превышают предельно допустимые нормы.

Среди α -активных аэродисперсных систем выделим содержащие гексафториды урана и плутония, а также аэрозоли полония.

Гексафторидные соединения встречаются в промышленных выбросах и представляют собой сложные аэродисперсные системы, в которых под воздействием газовой среды и температуры протекают процессы взаимного перехода α -активного вещества из частиц в газообразное состояние.

Таблица 8

Химические неорганические соединения долгоживущих α -активных нуклидов, у которых упругости паров при насыщении в нормальных условиях превышают предельно допустимые нормы

Наименование соединения	Химическая форма соединения	Температура плавления, °С	Температура кипения, °С
Гексафторид урана	UF ₆	64,5	Возгоняется при 56,6
Гексафторид нептуния	NpF ₆	53	55,2
Гексафторид плутония	PuF ₆	51	62,3
Гидрид полония	H ₂ Po	–36	35,5–37,0

Аэрозоли, образующиеся при производстве препаратов ²¹⁰Po и при эксплуатации облученных свинцово-висмутовых и свинцово-литиевой с примесью висмута эвтектик, могут сопровождаться газообразной фазой полония.

Проведенные исследования аэрозолей ²¹⁰Po, образующихся из препаратов металлического ²¹⁰Po, высаженного на медном порошке, показали, что во влажном воздухе присутствует газообразная фракция ²¹⁰Po, по своим физико-химическим свойствам напоминающая гидрид полония (H₂Po).

Гидрид полония – ковалентное соединение, которое может образовываться в результате гидролиза биметаллических соединений полония (к примеру, полония со свинцом). Эта реакция может протекать на аэрозольных частицах, находящихся во влажной среде, и

приводить к постоянному присутствию газообразной фракции полония в аэрозолях. Содержание газообразной фазы в ряде случаев может значительно превышать предельно допустимые значения. Гидрид полония – неустойчивое соединение, при распаде переходящее в атомы полония, которые в газовой среде вновь образуют аэрозольные частицы. В такой газо-аэрозольной системе непрерывно идет процесс взаимного перехода полония из аэрозольного в газообразное состояние и обратно. Эта особенность серьезно затрудняет улавливание полония из воздуха и требует применения комплексных средств, обеспечивающих одновременно фильтрацию частиц и сорбцию паров.

В случае β -активных нуклидов список аэрозолей с газообразной фракцией соединений нуклидов значительно расширяется. Большое значение приобретают органические соединения, которые обладают высокой летучестью. К таким аэрозолям относятся содержащие радиоактивные изотопы йода, рутения, ртути, теллура и др.

Радионуклиды йода являются одними из основных компонентов в продуктах деления ядерного топлива и содержатся в значительных количествах в выбросах ядерных реакторов и предприятий ядерного топливного цикла (ЯТЦ). Газообразный йод может находиться в воздухе в виде паров молекулярного йода (I_2), йодистого водорода (HI), гипойодной (йодоводородной) кислоты (HOI) и таких органических соединений, как CN_3I и др.

Допустимая объемная активность одного из самых опасных радионуклидов – ^{131}I равна $1,1 \times 10^3$ Бк/м³. Эта величина соответствует ничтожному количеству радиоактивного йода – всего $2,4 \times 10^{-13}$ г/м³. При этом известно, что в атмосфере постоянно присутствует стабильный изотоп йода (^{127}I), средняя концентрация которого равна 10^{-6} г/м³, т.е. даже в случае предельно допустимого загрязнения воздуха на один радиоактивный атом йода будет приходиться более миллиона стабильных. Между атомами происходит обмен, который приводит также к изменению фазового состояния веществ. Характер взаимодействия между газообразной и дисперсной фазами в системе определяется законами диффузии отдельных атомов и молекул к частицам и силами Ван-дер-Ваальса, удерживающими их на аэрозольных частицах. Предсказание эволюции их фазового состава необходимо для оценки радиационной опасности. Необходи-

димо учитывать, что газообразные соединения йода обладают различными сорбционными свойствами. Такие соединения, как I_2 , HI, хорошо сорбируются, а CH_3I и HOI относятся к трудносорбируемым соединениям, которые затрудняют улавливание и очистку воздуха от радионуклидов йода.

Радионуклиды *рутения* (^{103}Ru , ^{106}Ru) так же, как и радионуклиды йода, способны проникать через защитные оболочки ядерно-энергетических установок и в выбросах находятся в аэродисперсном и газообразном состояниях. В атмосферном воздухе аэрозоли радиоактивного рутения могут сопровождаться газообразной четырехокисью рутения (RuO_4), температура плавления которой равна $25,4^\circ\text{C}$. Например, при исследовании загрязненности атмосферы после Чернобыльской аварии (в период 8–19 мая 1986 г.) в воздухе обнаруживали газообразные продукты, содержащие ^{103}Ru , ^{106}Ru и даже изотоп теллура ^{132}Te . Однако доля летучих соединений рутения была значительно меньше, чем у йода и не превышала 13 %.

Контрольные вопросы к разд. 6

1. От чего зависит сила сопротивления среды движению аэрозольной частицы под действием силы тяжести?
2. Дайте определения времени релаксации частицы и расстояния торможения.
3. От чего зависит коэффициент диффузии аэрозольной частицы?
4. Что определяет число Пекле?
5. Определите явление броуновской коагуляции аэрозольных частиц. От чего зависит константа коагуляции?
6. Какие процессы ведут к зарядке аэрозольных частиц?
7. Как описывается распределение зарядов по частицам?
8. Как распределены заряды в атмосферном аэрозоле?
9. Как происходит униполярная зарядка радиоактивных аэрозолей? От чего зависит сдвиг распределения зарядов в случае радиоактивных аэрозолей?

10. Почему, заряжая частицы, можно увеличить эффективность их улавливания фильтром?

11. Приведите примеры радионуклидов, встречающихся одновременно в аэрозольной и газообразной формах.

12. Как уловить аэрозоль, содержащий радионуклиды в дисперсном и газообразном состоянии?

7. ХАРАКТЕРИСТИКИ РАДИОАКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ

К основным характеристикам радиоактивных аэрозолей относятся: радионуклидный состав, объемная активность, соотношение аэрозоль-газ, распределение частиц по размерам (дисперсность), растворимость, структура индивидуальных частиц. Знание перечисленных характеристик позволяет выполнить оценки доз внутреннего облучения при вдыхании радиоактивных аэрозолей, рассчитать перенос аэрозолей от источника его образования с учетом необходимых для расчета параметров, выбрать и разработать средства индивидуальной и коллективной защиты органов дыхания и т.д.

7.1. Нуклидный состав техногенных радиоактивных аэрозолей

Активность и радионуклидный состав аэрозолей измеряют методами спектрометрии ионизирующих излучений. Наиболее простой в методическом плане является подготовка к измерению на гамма-спектрометре (чаще всего с помощью полупроводниковых детекторов из особо чистого германия). Методы альфа-спектрометрии часто требуют предварительного радиохимического выделения радиоактивных веществ из отобранных аэрозольных проб и подготовки препаратов для измерения. Как правило, для измерений используются методы полупроводниковой альфа-спектрометрии с помощью кремниевых ионно-имплантированных детекторов. Методы бета-спектрометрии обычно используют только для измерения активности чистых бета-излучателей (тритий, стронций-90 и др.), так как бета-спектры, в отличие от гамма- и альфа-спектров, являются непрерывными. Применяют методы жидкостинтилляционной спектрометрии или радиометрии предварительно выделенных химических соединений – бета-излучателей. Выбор того или иного метода измерений зависит от множества факторов, среди ко-

торых – характеристики отобранной пробы, требования к точности, наличие априорной информации о нуклидном составе и т.д.

Аэрозоли, образующихся при эксплуатации и авариях атомных реакторов, при производстве тепловыделяющих элементов, в которых используется извлеченные из отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) делящиеся материалы (топливо REMIX, MOX), при переработке ОЯТ, при ядерных взрывах и т.д., обычно содержат множество искусственных радионуклидов, каждый из которых вносит определенный вклад в суммарную объемную активность воздуха внутри и вне производственных помещений и, следовательно, в дозу внутреннего облучения. До первого испытания ядерного оружия в июле 1945 г. искусственных радиоактивных аэрозолей в окружающей среде не существовало, в то время как природные радиоактивные аэрозоли существовали всегда и составляют естественный фон, т.е. привычную среду обитания.

Из-за малого периода полураспада вклад короткоживущих нуклидов в эффективную дозу, как правило, много меньше, чем средне- и долгоживущих радионуклидов.

Нуклидный состав радиоактивных аэрозолей сильно зависит от свойств потенциального источника и от условий их образования.

Состав аэрозолей, возникающих при *диспергировании* облученного ядерного топлива, в целом должен коррелировать с составом самого топлива. Однако необходимо учитывать, что летучие соединения радионуклидов могут покидать ядерное топливо и осаждаться на присутствующих в воздухе аэрозольных частицах, в том числе и на нерадиоактивных. Поэтому для повышения точности в каждом конкретном случае необходимо определять радионуклидный состав экспериментально.

Контроль состава аэрозолей входит в перечень регламентных работ на всех предприятиях атомной энергетики и промышленности, так как он содержит информацию о состоянии объекта использования атомной энергии на момент отбора проб. При появлении аэрозолей с параметрами, не характерными для данного объекта, может возникнуть необходимость принятия мер к восстановлению условий нормальной эксплуатации.

В составе радиоактивных аэрозолей, образующихся при эксплуатации исследовательских ядерных реакторов, АЭС с реакторами ВВЭР-1000, РБМК-1000 идентифицированы радионуклиды оско-

лочного и активационного происхождения, среди которых – ^{24}Na , ^{51}Cr , ^{58}Mn , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{131}I , $^{134,137}\text{Cs}$, а в окрестности АЭС – ^{51}Cr , ^{65}Zn , ^{131}I , и ^{134}Cs и др. Появление иных аэрозолей (например, содержащих топливные нуклиды) будет свидетельствовать о состоянии топливных элементов в активной зоне.

Вследствие распада радиоактивных элементов и их перераспределения между аэрозольными частицами и окружающей средой нуклидный состав аэрозолей со временем может существенно меняться. Это особенно четко проявилось при наблюдениях за составом аэрозолей-продуктов Чернобыльской аварии, произошедшей 26 апреля 1986 г.

При исследовании загрязнения атмосферного воздуха после аварии на Чернобыльской АЭС в период 8–19 мая 1986 г. над разрушенным реактором в составе аэрозолей были обнаружены радионуклиды ^{95}Zr , ^{95}Nb , $^{103, 140}\text{La}$, ^{131}I , $^{134,137}\text{Cs}$, ^{140}La и ^{144}Ce , объемная активность которых достигала несколько тысяч Бк/м³. Радионуклидный состав газо-аэрозольного выброса постоянно менялся и не соответствовал примерному составу облученного топлива на момент взрыва реактора. На рис. 5 приведены вариации концентрации и радионуклидного состава аэрозолей, измеренные непосредственно над разрушенным реактором. Например, 8 и 19 мая пробы отличались преобладанием йода, рутения и теллура, в остальные дни основной вклад в суммарное гамма-излучение проб вносили тугоплавкие радионуклиды циркония, ниобия и церия.

Со временем радионуклидный состав аэрозолей претерпел существенные изменения. Гамма-спектрометрический и автордиографический анализы аэрозолей, отобранных в помещениях станции и в 30-км зоне ЧАЭС 2–8 июля 1986 г. показали, что наибольший вклад вносили ^{95}Nb (24,9–34,7 %), ^{144}Ce (20,1–28,3 %) и ^{95}Zr (17,0–25,5 %), затем ^{103}Ru , ^{137}Cs , ^{140}Ba , ^{140}La и ^{137}Cs . Средняя объемная активность менялась в пределах 6–270 Бк/м³. Активность отдельных аэрозольных частиц диаметром 1 мкм достигала 12–40 Бк (измерения по гамма-излучению), при этом изотопный состав был различным.

Аналогичная картина сохранялась и в последующие месяцы. Содержание ^{137}Cs в аэрозольных частицах изменялось от 7 до 47 %, а содержание ^{106}Ru и ^{144}Ce доходило до 62 и 75 %, соответственно. В некоторых аэрозольных частицах присутствовали α -активные

изотопы топливной композиции, что указывало на различную природу образования частиц. Частицы, обогащенные рутением, вероятнее всего имели конденсационное происхождение, в то время как частицы, содержащие тугоплавкие топливные компоненты, попадали в атмосферу при диспергационных процессах.

Результаты измерения объемной активности аэрозолей по суммарному бета-излучению над ЧАЭС представлены на рис. 6. Пробы отбирали на фильтрующий материал, которым снаряжалась фильтр-гондола, размещенная на самолете-лаборатории АН-24pp.

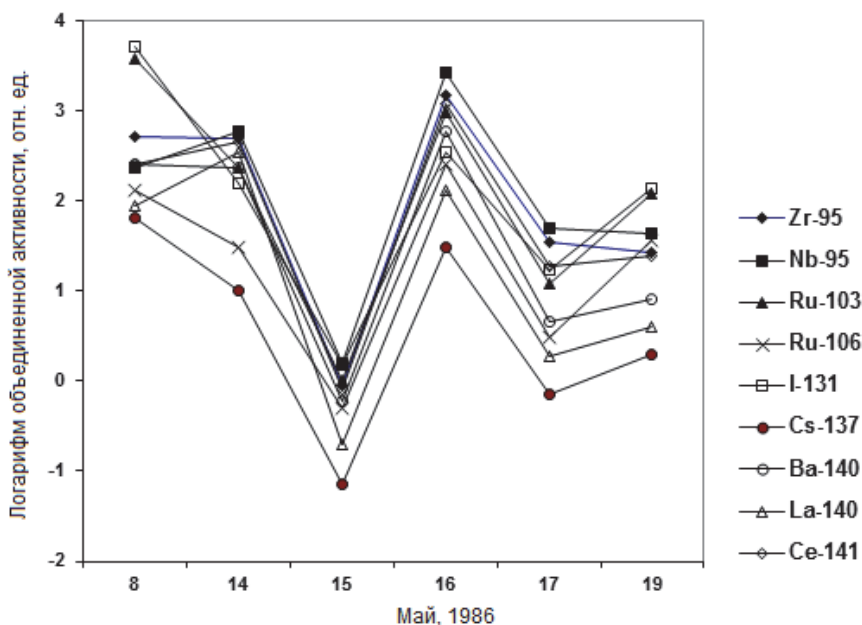


Рис. 5. Вариации объемной активности радиоактивных аэрозолей над разрушенным реактором Чернобыльской АЭС в мае 1986 г.¹

¹ Budyka A., Ogorodnikov B. // In Aerosol handbook. Measurement, Dosimetry and Health Effects / Ed. by L.Ruzer and N. Harley. N.Y.: CRC press, 2005. Ch. 16. P. 517–540.

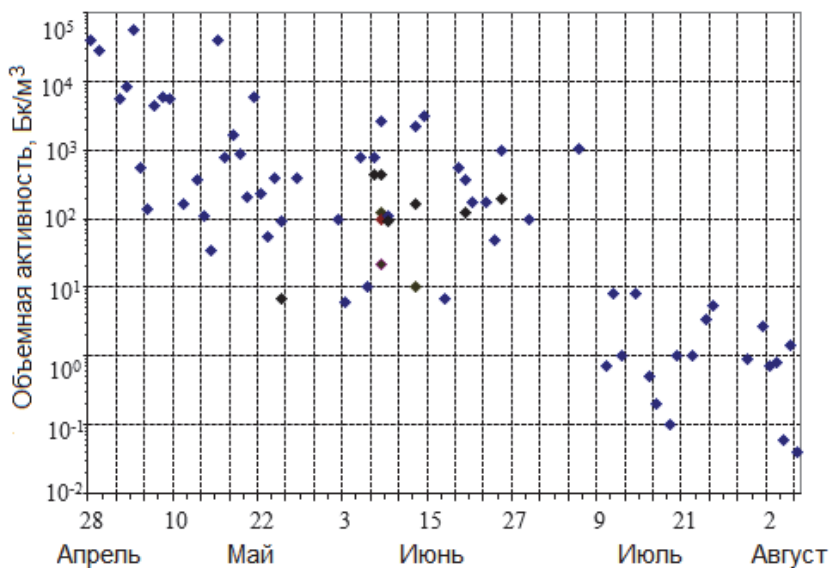


Рис. 6. Объемная активность бета-активных аэрозолей. Отбор проб с самолета Ан-24рр в апреле-августе 1986 г. над ЧАЭС¹

Контрольные вопросы к разд. 7.1

1. Какие методы спектрометрии используются для определения нуклидного состава и объемной активности радиоактивных аэрозолей?
2. Какие процессы могут приводить к возникновению техногенных радиоактивных аэрозолей, содержащих нуклиды осколочного происхождения?

7.2. Эволюция фазового состава радиоактивных аэрозолей

Между газовой средой и частицами происходит постоянное взаимодействие, которое влияет на состояние частиц и приводит к изменениям как дисперсного, так и фазового состава аэрозолей. Рассмотрим изменение соотношения аэрозоль-газ для радиоактивного йода – одного из наиболее опасных осколочных радионуклидов.

¹ Budyka A., Ogorodnikov B. // In Aerosol handbook. Measurement, Dosimetry and Health Effects / Ed. by L.Ruzer and N. Harley. Second Edition. Ch. 18. N.Y.: CRC press, 2012. P. 473–502.

Для образования собственной дисперсной сконденсированной фазы или молекулярного слоя на поверхности частиц-носителей концентрация радионуклидов в свободной атмосфере слишком мала. Фазовый обмен с атмосферным аэрозолем возможен лишь при адсорбции отдельных атомов или молекул радионуклидов на аэрозольных частицах. Этот процесс обратим, и при достаточно медленном изменении внешних условий его можно считать квазистационарным. Очевидно, его динамика определяется законами молекулярной диффузии и силами Ван-Дер-Ваальса. Рассмотрим поведение аэрозолей, содержащих летучие соединения радиоактивного йода.

Наиболее вероятными формами существования газообразного йода, способными к миграции в атмосфере, а также к химическому, изотопному и фазовому (в том числе адсорбционному) обмену, являются его молекулы I_2 и летучие соединения – HI , $HI O_3$, CH_3I и др.

Большой интерес представляют результаты экспериментальных исследований, выполненных после аварии 1957 г. ядерного реактора в Уиндскейле. Их проводили в воздушном пространстве внутри защитных оболочек ядерных реакторов и аэрозольных камер. Изучали взаимодействие модельных аэрозолей и летучих соединений стабильного ^{127}I , меченых ^{132}I . В опытах наблюдали осаждение газообразного компонента йода на внутренней поверхности оболочек и на присутствующих в воздухе или специально добавляемых аэрозольных частицах. Оказалось, что скорость осаждения газообразного йода на частицах пропорциональна их массовой и счетной концентрации. Распределение активности аэрозольного йода по размерам наблюдали в диапазоне 0,05–0,5 мкм. Скорость осаждения и коэффициент (вероятность) аккомодации газообразного йода на аэрозольных частицах оказались существенно ниже, чем у дочерних продуктов радона (ДПР), а мода активностного распределения – больше чем у ДПР. Это однозначно свидетельствовало об адсорбционном механизме рассматриваемого процесса, убедительным доказательством чего является наблюдаемая его обратимость.

В этих работах были оценены количественные характеристики десорбции газообразного йода с частиц, зависящие от их природы. Полученные результаты нашли отражение в рекомендациях МАГАТЭ по локализации аварийных выбросов радиоактивного йода с помощью спринклерных систем, генерирующих капли размером ≥ 10 мкм.

В результате Чернобыльской аварии почти весь йод, накопившийся в реакторе, попал в атмосферу (было выброшено примерно $6,7 \cdot 10^{17}$ Бк ^{131}I). Практически во всех работах, посвященных начальному периоду аварии, приводятся величины соотношения аэрозоль-газ для радиоактивного йода. Это соотношение определяли, используя пробоотборники, состоящие из аэрозольного фильтра и последующей ступени для улавливания газообразного йода (сорбционные колонки, сорбционно-фильтрующие материалы).

На рис. 7 приведены данные глобального мониторинга ^{131}I . Из представленных данных следует, что измеренная доля газообразного йода находилась в пределах 0,05–0,95.

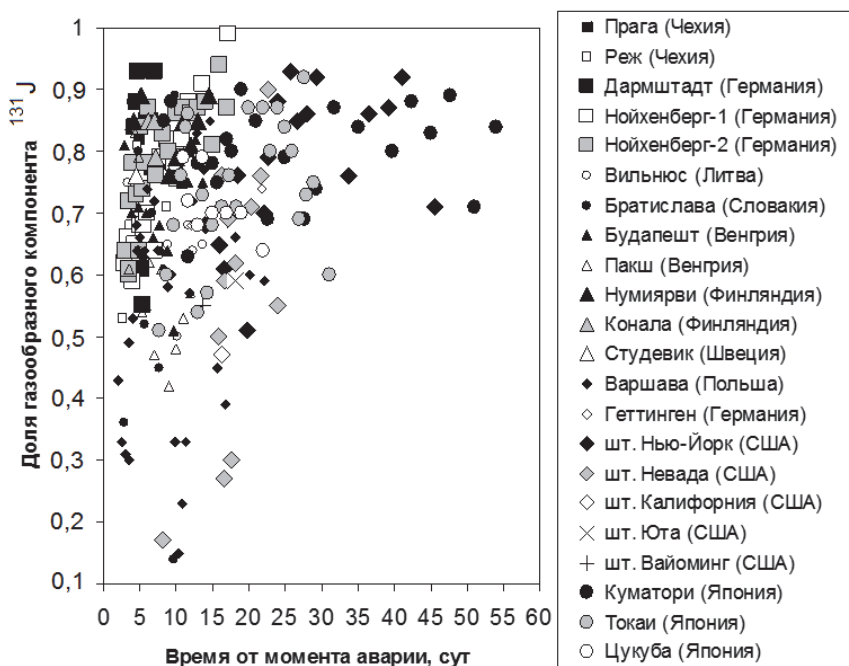


Рис. 7. Доля газообразного радиоактивного йода-131 после аварии на ЧАЭС 1986 г. по данным исследований в Европе, США и Японии¹

¹ Budyka A., Ogorodnikov B. // In Aerosol Handbook. Measurement, Dosimetry and Health Effects. Ed. by L. Ruzer and N. Harley. N.Y.: CRC Press, 2005.

При попытке сопоставления приведенных на рис. 7 данных оказалось, что имеется положительная корреляция между долями газообразных компонентов ^{131}I и продолжительностями отбора проб. (рис. 8). Это свидетельствует о существовании десорбции газообразных компонентов с аэрозольных фильтров и их переноса на последующие ступени пробоотборного устройства. Время удержания йода на аэрозольной частице определяется вероятностью десорбции, зависящей от многих факторов. Если это время сопоставимо с продолжительностью отбора пробы, происходит вторичное перераспределение радиоактивного йода между улавливающими ступенями пробоотборника. Таким образом, экспериментальные значения доли газообразного компонента йода в атмосфере могут быть существенно завышены по сравнению с реальными. Это, в конечном случае, приводит к неправильным дозовым оценкам.

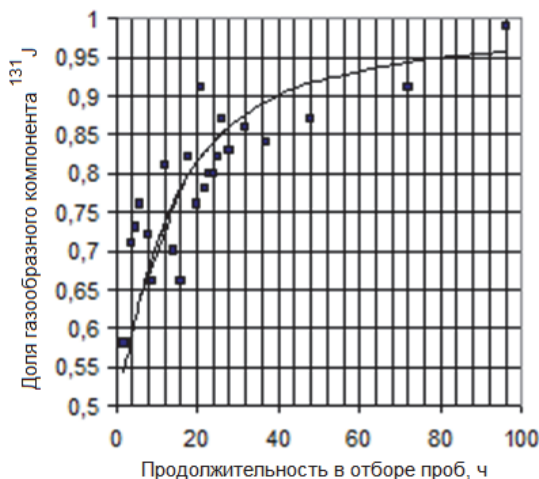


Рис. 8. Зависимость измеренных долей газообразного ^{131}I , представленных на рис. 7, от продолжительности отбора проб. Кривая проведена по уравнению (38): ■ — эксперимент; — — уравнение (38)¹

Рассмотрим модель поведения радиоактивного йода в пробоотборном устройстве. Пусть первая его ступень полностью улавливает аэрозоли, а вторая — газообразные компоненты. При равновес-

¹ Budyka A.K. // J. Aerosol Sci. 2000. 31. S1. 480–481.

ном соотношении аэрозоль-газ в атмосфере динамика накопления активности на ступенях в процессе отбора пробы описывается уравнениями

$$\frac{dA_i}{dt} = qC_{a,g} \mp \lambda_{des} A_i \quad (37)$$

при начальных условиях $A_i(0) = 0$. Здесь A_i – активность, накопленная на i -й ступени пробоотборника ($i = 1, 2$) за время t ; C_a – концентрация аэрозолей йода; C_g – концентрация газообразного йода ($C_a + C_g = C = \text{const}$); λ_{des} – вероятность десорбции молекул йода с поверхности аэрозольной частицы в единицу времени. Введем обозначения

$$\frac{A_2(t)}{A_1(t) + A_2(t)} = \delta_{\text{exp}}(t) \quad \text{и} \quad \frac{C_g}{C} = \delta,$$

из решения системы (37) получим связь между долей газообразного компонента радиоактивного йода, определяемой из эксперимента, и его равновесной долей (δ) в атмосфере:

$$\delta_{\text{exp}}(t) = 1 - \frac{1 - \delta}{\lambda_{des} \cdot t} (1 - e^{-\lambda_{des} \cdot t}). \quad (38)$$

На рис. 8 приведена кривая уравнения (38) с параметрами λ_{des} и δ , полученными методом сопоставления расчетной кривой и экспериментальных точек с помощью нелинейного регрессионного анализа, и равных $0,13 \text{ ч}^{-1}$ и $0,48$, соответственно. Следовательно, за характерное время десорбции $t_{1/2} = -\ln 2 / \lambda_{des}$, равное приблизительно $5,3 \text{ ч}$, с аэрозольного фильтра на вторую ступень пробоотборника переносится почти половина радиоактивного йода. Величина $t_{1/2}$ не зависит от скорости отбора пробы. Полученные величины δ и λ_{des} являются осредненными по глобальному масштабу. Доля газообразного йода может варьировать в зависимости от концентрации частиц-носителей и атмосферных условий.

Можно показать, что связь между модой активностного распределения по размерам и коэффициентом аккомодации газовых молекул ^{131}I на аэрозольные частицы выглядит как на рис. 9. Видно, что рост величины активностной моды является следствием падения вероятности аккомодации молекул ^{131}I более чем на 2 порядка.

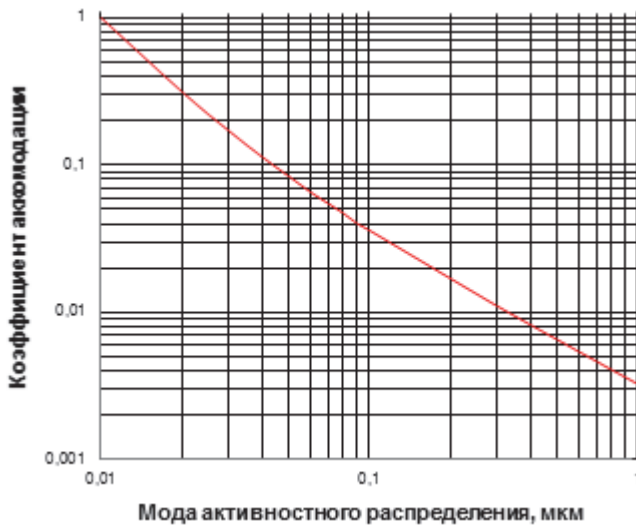


Рис. 9. Связь между активной модой и коэффициентом аккомодации¹

На рис. 10 приведены результаты расчета зависимости доли газообразного компонента ^{131}I от коэффициента аккомодации на атмосферных аэрозольных частицах с плотностью 2 г/см^3 . Графики соответствуют трем типичным уровням концентраций атмосферного аэрозоля: 10 мкг/м^3 (естественный аэрозольный фон), 30 мкг/м^3 (городской воздух), 100 мкг/м^3 (воздух в промышленных зонах и вблизи транспортных магистралей).

Некоторое различие в модах и медианах у логарифмически нормального и степенного распределений приводит к необходимости использования не определенной величины активной моды, а некоторого ее диапазона $-0,15 \leq r_{Am} \leq 0,4 \text{ мкм}$. Он соответствует диапазону активных медиан логарифмически нормальных спектров, полученных экспериментально для продуктов Чернобыльской аварии. Указанный на рис. 9 и 10 диапазон коэффициентов аккомодации молекулярного ^{131}I на частицах атмосферного аэрозоля составляет $8,2 \cdot 10^{-3} \leq \alpha \leq 2,3 \cdot 10^{-2}$. Найденные величины α превышают значение $5 \cdot 10^{-3}$, которая применялась в работе Гэрланда (см. рис. 10) для прогнозирования доли газообразного компо-

¹ Budyka A. // J. Aerosol Sci. 2000. 31. S1. 478–479.

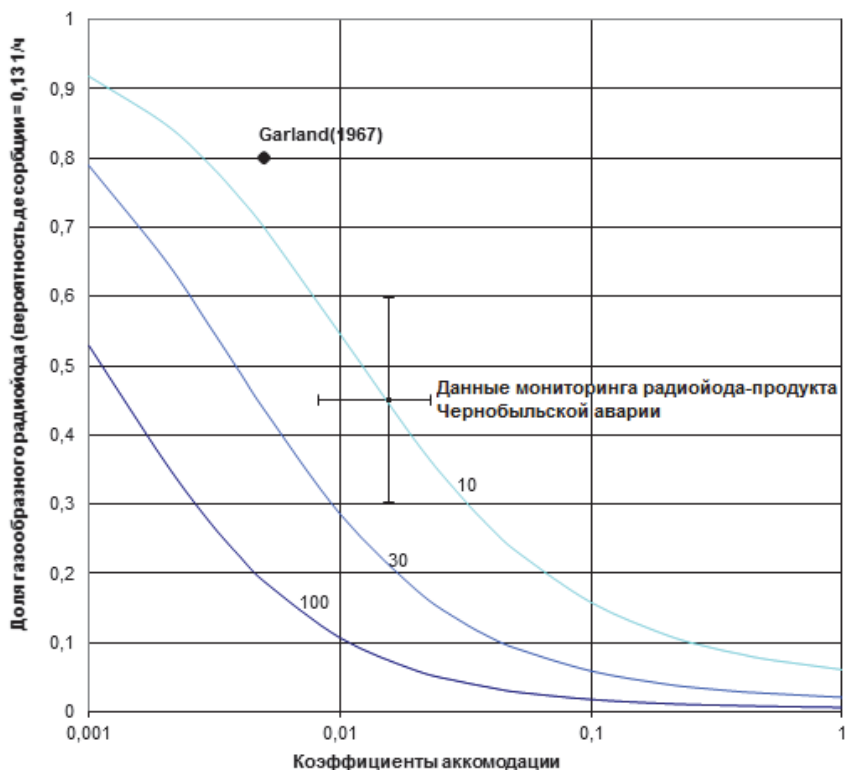


Рис. 10. Доля газообразного йода в зависимости от коэффициента аккомодации.¹
Вероятность десорбции 0,13 л/ч. Цифры у кривых – концентрация
атмосферного аэрозоля, мкг/м³

нента радиойода в атмосфере. Этот же диапазон α можно принять и для радионуклидов рутения, так как для летучего тетраоксида рутения RuO_4 , наиболее вероятной формы существования в атмосфере, молекулярные характеристики практически не отличаются от характеристик молекулярного йода.

Из данных, представленных на рис. 10, следует также, что при массовых концентрациях атмосферного аэрозоля от 10 до 100 мкг/м³ доля газообразного компонента ^{131}I может меняться в

¹ Garland J. // J. Nucl. Energy. 1967. 21. 9. 687–700.
Budyka A. // J. Aerosol Sci. 2000. 31. S1. 478–479.

пределах 5–60 %. Этот диапазон соответствует основной части данных мониторинга (см. рис. 7), где более высокие значения доли газообразного компонента можно объяснить уносом йода с аэрозольных фильтров при длительных отборах проб.

Контрольные вопросы к разд. 7.2

1. Как формируются аэрозоли радиоактивного йода?
2. Назовите летучие формы соединений йода.
3. В каких пределах измеряли долю газообразного йода при мониторинге газо-аэрозольных выбросов – продуктов Чернобыльской аварии?
4. Почему происходит унос йода с частиц, задержанных аэрозольным фильтром, на сорбционную ступень?
5. Какие радионуклиды могут находиться в газообразной форме?
6. Как изменится доля газообразной фракции нуклидов при увеличении концентрации ядер конденсации?

7.3. Размеры радиоактивных аэрозольных частиц

На первичный дисперсный состав (распределение аэрозольных частиц по размерам), прежде всего, влияет способ образования аэрозолей и состав исходного вещества. С течением времени дисперсный состав претерпевает изменения, и его временная эволюция зависит от множества факторов.

7.3.1. Влияние дисперсного состава аэрозолей на дозу внутреннего облучения

Информация о дисперсном составе *радиоактивных* аэрозолей необходима, прежде всего, для адекватной оценки эффективной дозы внутреннего облучения при ингаляции. Известно, что радиоактивные аэрозольные частицы, попадая в организм вместе с вдыхаемым воздухом, осаждаются в различных отделах дыхательного тракта в зависимости от их размеров. Соответственно, и дозовые нагрузки на организм при одной и той же объемной активности аэрозоля будут различаться в зависимости от дисперсности.

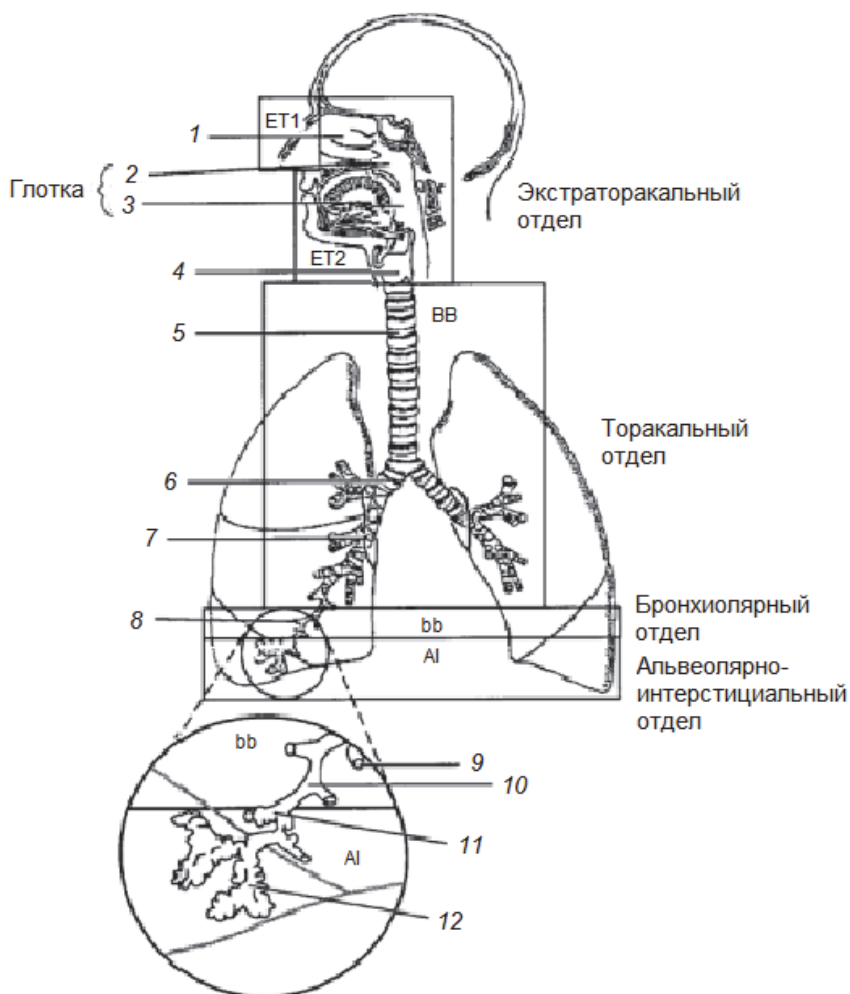


Рис. 11. Модель органов дыхания человека.
Расшифровка обозначений в тексте

Согласно модели, приведенной в Публикации 66 МКРЗ, дыхательный тракт состоит из пяти отделов (камер), отличающихся функциональным назначением. Экстраторакальный отдел (входная часть дыхательного тракта) состоит из ET1 – передней части носового хода, и области ET2, включающей в себя заднюю часть носового

вого хода 1, носовую часть глотки 2, ротовую часть глотки 3 и гортань 4. В торакальном отделе ВВ находится трахея 5, главные бронхи 6 и бронхи 7. В бронхиальном отделе bb имеются воздухоносные пути от бронхиол 8–9 до терминальных бронхиол 10. Альвеоларно-интерстициальный отдел А1 включает дыхательные бронхиолы 11, альвеоларные мешки и альвеолы 12.

В последнем отделе происходит газообмен. На рис. 11 приведена иллюстрация модели.

Значения долей аэрозолей, задержанных в перечисленных отделах дыхательного тракта в зависимости от АМАД, приведены в табл. 9. Поглощение радиоактивных веществ моделируется с учетом продолжительности их растворения и усвоения. Предполагается, что скорость этих процессов одинакова во всех отделах, за исключением ЕТ1, где растворение аэрозольных частиц невозможно в принципе. Очевидно, скорость растворения частиц и последующего усвоения вещества в крови меняется в зависимости от их состава.

В зависимости от дисперсности частиц и класса растворимости (см. разд. 7.4) рассчитываются дозовые коэффициенты внутреннего облучения ε , представляющие собой константы с размерностью Зв/Бк, т.е. эффективные дозы от поступления единичной объемной активности. Так как в НРБ значения ε приведены для частиц с АМАД = 1 мкм, необходимо рассчитывать поправки к дозовому коэффициенту, если АМАД отличается от величины 1 мкм. Для этого можно использовать вычислительную программу LUDEP (Lung Dose Evaluation Program), в которой реализована официальная модель МКРЗ, приведенная в 66 Публикации.

Пример использования LUDEP для расчета поправок к дозовым коэффициентам при ингаляционном поступлении радионуклидов плутония, цезия и стронция приведен на рис. 12. Как видно из представленных данных, при снижении АМАД с 1 до 0,1 мкм поправочный коэффициент для всех трех радионуклидов возрастает. Однако его рост неодинаков: наибольшая скорость роста характерна для быстрорастворимых соединений стронция. Если не учитывать размер частиц, ошибка при расчете доз от Sr может достигнуть 260 %. Поправки для ^{239}Pu и ^{90}Sr классов П ведут себя совершенно аналогично, при этом величина поправки медленно растет до 1,4. Наконец, в субмикронном диапазоне размеров поправка для ^{137}Cs и ^{239}Pu (П) не превышает 1,13.

Доля осажденных радиоактивных аэрозолей (в % от вдыхаемой активности) в различных отделах дыхательного тракта взрослого мужчины в зависимости от интенсивности нагрузки.¹

Расчеты выполнены для АМАД = 1 и 5 мкм, $\sigma = 2.5$. Плотность частиц = 3 г/см³

Область	1 кмк АМАД				5 кмк АМАД			
	Сон	Сидение	Легкая нагрузка	Интенсивная нагрузка	Сон	Сидение	Легкая нагрузка	Интенсивная нагрузка
Дыхание через нос								
ET1	9,5	10	18	8,8	27	28	35	17
ET2	11	13	23	14	32	34	41	39
ВВ	0,82	0,86	1,3	5,0	1,6	1,6	1,8	11
bb	3,2	2,8	1,5	1,9	2,8	2,4	0,9	2,4
A	14	15	9,9	12	11	10	4,5	7,3
Итого	39	42	53	42	74	76	83	77
Дыхание через рот								
ET1	5,4	6,0	4,5	4,2	17	18	12	9,5
ET2	7,1	7,9	8,4	9,6	27	28	33	37
ВВ	1,1	1,2	3,3	6,2	3,4	3,7	9,8	15
bb	3,7	3,3	2,5	2,3	4,9	4,3	3,7	3,2
A	17	17	15	13	16	16	13	9,2
Итого	34	36	34	35	68	70	71	73

¹ Annals of the ICRP. Supporting Guidance 3. Pergamon. 2002. V. 32. № 1-2.

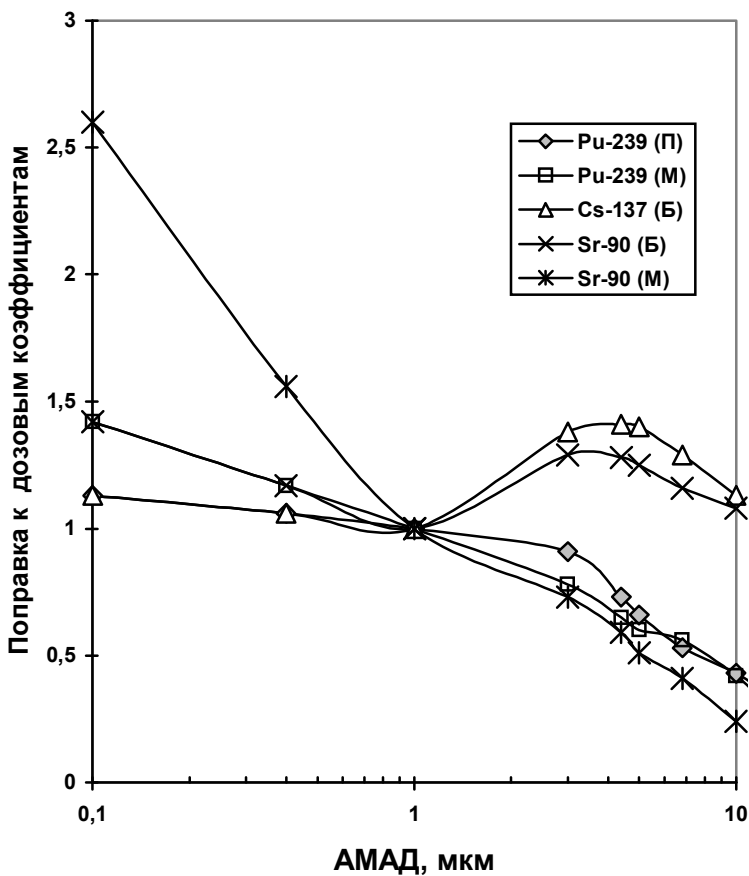


Рис. 12. Поправка к дозовому коэффициенту внутреннего облучения при ингаляционном поступлении радионуклидов цезия, стронция и плутония различных классов растворимости в зависимости от АМАД.

Обозначения: Б – быстрорастворимые соединения;

П – соединения, растворимые с промежуточной скоростью;

М – медленно растворимые соединения¹

¹ Расчет с помощью программы LUDEP.

Контрольные вопросы к разд. 7.3.1

1. Объясните различие в осаждении аэрозольных частиц 1 и 5 мкм в органах дыхания. Какие механизмы осаждения частиц преобладают в обоих случаях?

2. К какой ошибке при расчете дозы внутреннего облучения может привести игнорирование размеров радиоактивных аэрозольных частиц?

7.3.2. Измерение распределения по размерам

Измерения дисперсности аэрозолей основаны на известной зависимости той или иной характеристики аэрозольной частицы от ее размера. Универсального метода определения дисперсности во всем диапазоне размеров частиц аэрозоля (от нескольких нанометров до нескольких десятков микрометров) не существует. С некоторой оговоркой, к прямым методам определения размеров частиц относятся оптическая и электронная микроскопии – весьма трудоемкие методы, используемые, как правило, лишь при детальных исследованиях структуры частиц. Все косвенные методы анализа сводятся к решению интегрального уравнения Фредгольма первого рода

$$n(\vec{x}) = \int K(\vec{x}, r) f(r) dr, \quad (39)$$

где $f(r)$ – плотность распределения частиц по размерам (неизвестная функция); $K(\vec{x}, r)$ – функция отклика (ядро уравнения – известная функция); $n(\vec{x})$ – измеряемая с некоторой погрешностью величина; $\vec{x}$ – совокупность параметров; r – радиус частиц.

Уравнение (39) принадлежит к классу некорректно поставленных задач. Если в качестве ядра этого уравнения взять величину $C \delta(r - r_0)$, найдем, что $n(x) \approx f(r_0)$.

Рассмотрев случай

$$K(\vec{x}, r) = V_+(r - r_0) = \begin{cases} 0, & r \leq r_0; \\ 1, & r > r_0, \end{cases}$$

получим, что $n(x) = 1 - F(r_0)$. Здесь $F(r)$ – функция распределения частиц по размерам.

Методов, в основе которых лежат функции отклика в виде идеальной ступеньки, не существует. Общим же для всех методов яв-

ляется однозначная зависимость функции отклика от размера частиц, причем чем сильнее и точнее определена зависимость – тем лучше метод может быть реализован практически. Известны методы определения размеров, основанные на искусственной зарядке частиц и измерении их подвижности в электрическом поле. Фотоэлектрические методы основаны на регистрации излучения, рассеянного частицей. Их недостаток состоит в том, что функция отклика зависит не только от размера частицы, но и от показателя преломления (состоящего из рассеивающей и поглощающей компонент) и от угла наблюдения. Поэтому при измерении одинаковых размерных спектров аэрозолей латекса и сажи будут получены разные результаты. Измеренный с помощью фотоэлектрических методов размер частицы называется *оптическим эквивалентным диаметром (радиусом)*, и часто в силу вышеуказанных причин не соответствует другим характеристикам размеров.

Общий недостаток этих классов методов состоит в том, что при измерениях невозможно разделить интересующие нас частицы и аэрозольный фон. Например, при использовании лазерного аэрозольного спектрометра для измерения распределения по размерам аэрозольных частиц, образованных в начальный период аварии на Чернобыльской АЭС, не было выявлено различий в измеренных спектрах в 30-км зоне и в центральных районах Европейской части СССР, измеренных до аварии.

В связи с этим представляется логичным такое проведение измерений, когда разделение на размерные фракции происходит непосредственно в пробоотборном устройстве, после чего можно определить химический (радионуклидный) состав каждой фракции. Этот принцип присущ методам, основанным на диффузионном и аэродинамическом разделении частиц вследствие их осаждения на препятствиях по указанным механизмам.

Диффузионный эффект разделения реализован в так называемых диффузионных батареях. Он отлично работает при измерении размеров очень маленьких (менее 0,1–0,2 мкм) частиц, но объем анализируемого аэрозоля небольшой: как правило, не превышающий нескольких $\text{дм}^3/\text{мин}$.

Импактор. Наиболее распространенным *инерционным* осадителем для дисперсного анализа аэрозолей является импактор. Разнообразие конструкций импакторов (каскадные, виртуальные, импак-

торы низкого давления и др.) обусловлено необходимостью учитывать разнообразие параметров и характеристик дисперсной фазы и конкретными задачами исследования. В настоящее время существует множество конструкций импакторов, предназначенных для различных аэродисперсных систем, условий отбора и размерных диапазонов. Их описанию и методам расчета посвящены обзоры Н.А. Фукса и Мэйпла, а также оригинальные работы, публикуемые в научных аэрозольных журналах: *Journal of aerosol sciences*, *Aerosol science and technology*, *Atmospheric environment*, *Powder technology* и др.

Каскадные импакторы, обычно используемые для отбора радиоактивных аэрозолей, состоят из последовательно расположенных каскадов (общее их число составляет обычно 5–8), на каждом из которых происходит осаждение той или иной размерной фракции. Препятствием в каскаде импактора являются плоские поверхности или калиброванные отверстия, а в заключительном каскаде всегда используется аэрозольный фильтр, улавливающий все частицы, прошедшие каскады без осаждения. На рис. 13 приведена принципиальная схема каскадного импактора. В каждом последующем каскаде диаметр сопла W и расстояние до коллектора частиц (препятствия) S меньше, чем в предыдущем. Поэтому в первом каскаде оседает самая крупная размерная фракция частиц, а затем средние размеры уловленных каскадом частиц снижаются с увеличением номера каскада.

Эффективность осаждения частицы заданного размера зависит от числа Рейнольдса Re , равного $\rho V_0 W / \mu$ в случае круглого отверстия и $\rho V_0 2W / \mu$ в случае прямоугольного отверстия (здесь ρ , V_0 , μ – плотность, скорость и вязкость газа, соответственно), и от числа Стокса, определяемого по формуле

$$St = \tau C_{Kn} V / W, \quad (40)$$

где V – скорость частицы, время релаксации τ определяется по формуле (24), а поправка Каннингема C_{Kn} – по формуле (21).

На рис. 14 приведена идеальная (ступенька) и типичная реальная зависимость эффективности каскада от $\sqrt{St}$.

На рис. 15 представлено сопоставление измеренных эффективностей 4-го и 5-го каскадов импактора Андерсена с расчетом эффективности осаждения, выполненного при помощи CFD-кодов.

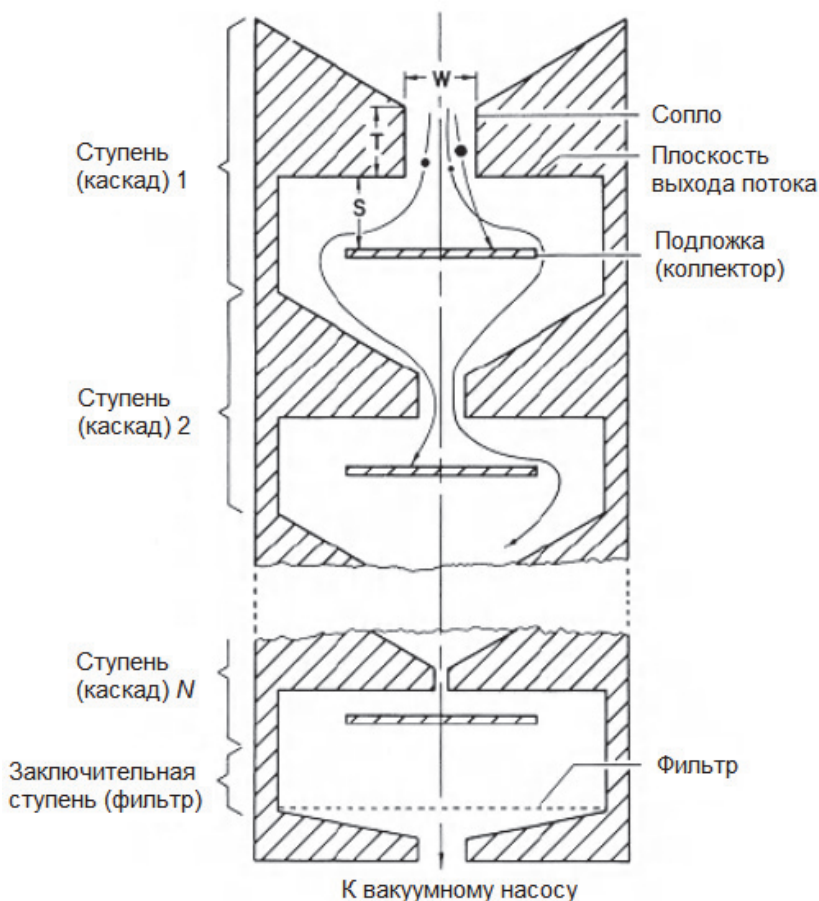


Рис. 13. Схема каскадного импактора. W – ширина входного канала каскада (диаметр круглого канала или сторона прямоугольного канала);
 S – расстояние от окончания входного канала до коллектора¹

Как следует из рис. 14 и 15, функция отклика (ядра уравнения (39)) для каждого каскада возрастает от 0 до 1 в узком размерном диапазоне, что позволяет довольно точно найти оценку функции распределения по размерам, решив обратную задачу (39).

¹ Hinds W. Aerosol Technology. Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles. N.Y.: Wiley, 1982. 424 p.



Рис. 14. Идеальная и реальная эффективности осаждения аэрозолей в каскаде импактора в зависимости от числа Стокса

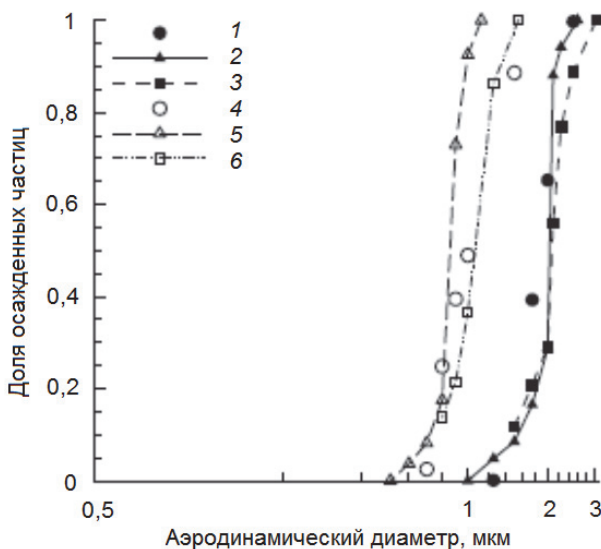


Рис. 15. Сопоставление экспериментальных и расчетных данных эффективности осаждения аэрозолей на 4-м и 5-м каскадах импактора Андерсена.¹
Каскады S4 (1–3) и S5 (4–6): 1 и 4 – расчет; 2 и 5 – эксперимент;
3 и 6 – данные производителя

¹ Minsoo Son et al. // J. of Aerosol Science. 2015. 85. P. 1–9.

Как правило, импакторы эффективны для исследований аэрозолей в размерном диапазоне 0,2–15 мкм. В импакторах низкого давления возможен анализ размеров в диапазоне 0,03–0,7 мкм. К наиболее распространенным импакторам для контроля воздуха на рабочих местах относятся 8-каскадный импактор Андерсена (Andersen impactor), измеряющий размеры в диапазоне 0,4–10 мкм, и 8- или 10-каскадный Micro Orifice Uniform Deposit Impactor (MOUDI), предназначенный для измерения частиц диаметром от 0,056 мкм. Персональные импакторы, с помощью которых воздух анализируется непосредственно в зоне дыхания работника, – довольно компактные устройства, позволяющие анализировать частицы от 0,5 мкм (например, Marple personal impactor) или от 0,9 мкм (Personal Inhalable Dust Spectrometer). Объемная скорость прокачки через персональный импактор обычно составляет 2 л/мин.

Очевидно, для разделения аэрозоля по размерным фракциям объемная скорость воздуха в импакторе должна быть фиксированной и не меняться в процессе отбора пробы. Как правило, она составляет несколько десятков литров в минуту. Для анализа воздуха с низким содержанием дисперсных примесей применяют импакторы с высокой производительностью (сотни литров в минуту), но при этом вес и габариты таких моделей существенно возрастают, а для обеспечения представительности пробы применяют мощные высоконапорные воздуходувки. После окончания отбора пробы импактор разбирают, осадок, задержанный каждым каскадом, анализируют, и строится гистограмма распределения по размерам.

На рис. 16 изображен импактор Андерсена, mod. Mark II и его каскады, а на рис. 17 – персональный импактор Marple.

Большинство сведений о дисперсности атмосферных аэрозолей и аэрозолей на рабочих местах зарубежными исследователями получены с помощью импакторов.

Другим препятствием, на котором частицы можно разделить на размерные фракции (хотя и в неявном виде), является фильтр. Процесс разделения основан на зависимости эффективности улавливания от размера аэрозольных частиц. При заданной скорости потока эффективность с возрастанием размера частицы вначале уменьшается, проходя через минимум, а затем резко растет.



Рис. 16. Восьмикаскадный импактор Андерсена Mark II (ACI).¹
Объемная скорость воздуха 28,3 л/мин. Диапазон размеров 0,3–12 мкм



Рис. 17. Восьмикаскадный персональный импактор Marple (Andersen Inc).²
Объемная скорость воздуха 2 л/мин. Анализ размеров от 0,5 мкм

¹ Vinchurkar S. et al. // J. Aerosol Sci. 2009. 40. 807–822.

² Maynard A.D., Baron P.A. // In Aerosols Handbook. Chapter 11. CRC Press. 2005. P. 225–264.

Метод многослойных фильтров (ММФ), разработанный в Физико-химическом институте им. Л.Я. Карпова, предназначен для определения параметров логарифмически нормального распределения радиоактивных аэрозолей (активностного медианного аэродинамического диаметра (АМАД) и стандартного геометрического отклонения σ по размерам в диапазоне 0,1–7 мкм.

Метод основан на исследованных закономерностях улавливания аэрозолей волокнистыми фильтрующими материалами. Фильтр состоит из ультратонких волокон, расположенных случайным образом и ориентированных, в основном, перпендикулярно воздушному потоку. Объемная доля волокон невелика и не превышает 3–5 %. Фильтрация аэрозолей волокнистыми материалами происходит за счет одновременного действия нескольких физических процессов. При невысоких скоростях потока преобладающим является конвективная диффузия аэрозольных частиц из потока на волокно. Соударяясь с молекулами газа, аэрозольная частица перемещается в пространстве и, коснувшись волокна, остается на нем за счет сил адгезии. С возрастанием скорости потока и размера частицы эффективность диффузионного осаждения уменьшается.

Если аэрозольная частица движется в потоке вдоль линии тока, проходящей около волокна на расстоянии меньше ее радиуса, она касается поверхности волокна и задерживается на нем. Данный механизм, называемый *эффектом зацепления*, не зависит от скорости потока.

Заряженная аэрозольная частица может быть уловлена фильтром либо за счет кулоновского взаимодействия с волокном, либо, если волокно не заряжено, за счет дипольного взаимодействия. Вклад электростатического захвата снижается при увеличении скорости потока, и уже при скоростях более 0,5 м/с им можно пренебречь.

С увеличением скорости, размера и плотности аэрозольной частицы начинает проявляться инерционный механизм улавливания. Частица, двигаясь по инерции, отклоняется от линии тока и сталкивается с волокном.

Метод определения дисперсности аэрозолей основан на зависимости того или иного механизма осаждения частиц на волокнах и, следовательно, эффективности улавливания от размера частиц. Из рассмотрения механизмов фильтрации аэрозолей волокнистыми

материалами следует, что для анализа дисперсности можно в принципе «использовать» селективность улавливания частиц за счет как диффузии, так и инерции. Например, на диффузионном эффекте основано действие диффузионных батарей. Однако реализация метода определения размеров частиц в диффузионной области их улавливания волокнистыми фильтрами возможна лишь при скоростях фильтрации не выше нескольких сантиметров в секунду и для частиц диаметром менее 0,2 мкм. Если обеспечить режимы фильтрации, при которых основным механизмом улавливания аэрозолей будет инерционный захват, то получим быстрый, простой и эффективный способ оценки размеров частиц.

В ММФ информация о дисперсности аэрозоля получается, исходя из экспериментально определенных долях вещества, осажденного на каждом слое.

Размеры многих естественных и искусственных аэрозолей можно аппроксимировать логарифмически нормальным распределением (ЛНР). Перепишем формулу (14) из разд. 4.2 в следующем виде:

$$f(d) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \ln \sigma} \cdot d} e^{-\frac{(\ln d - \ln d_0)^2}{2 \ln^2 \sigma}}, \quad (41)$$

где d – диаметр частиц, а d_0 и σ – параметры ЛНР (медианный диаметр и стандартное геометрическое отклонение). Таким образом, если предположить, что размеры аэрозольных частиц подчинены ЛНР, задача сводится к определению параметров ЛНР из системы уравнений

$$N_i = \int_0^{\infty} f(d) E_i(d) dd, \quad i = 1, \dots, m, \quad (42)$$

где N_i – доля вещества, уловленная i -м фильтром и определяемая из эксперимента, а $E_i(d)$ – зависимость эффективности i -го фильтра от размеров частиц с учетом задержки вещества предыдущими $(i - 1)$ -ми фильтрами.

Задача (42) решается либо путем минимизации функционала невязки

$$Q = \sqrt{\sum_i \left(N_i - \int_{d_1}^{d_2} E_i(d) f(d) dd \right)^2}, \quad (43)$$

либо (при отсутствии возможности обработать экспериментальные данные непосредственно на компьютере) с использованием номограмм. Номограммы рассчитываются для конкретной композиции пакета фильтров, используемой в экспериментах при заданной скорости, на основе известных зависимостей эффективности улавливания аэрозолей от скорости и размера аэрозольных частиц. Пример номограммы для нахождения АМАД и σ при скорости фильтрации 1 м/с приведен на рис. 18. Так, если на первом и втором фильтрах пакета обнаружено по 20 % активности, это соответствует АМАД = 0,48 мкм и $\sigma = 1,9$.

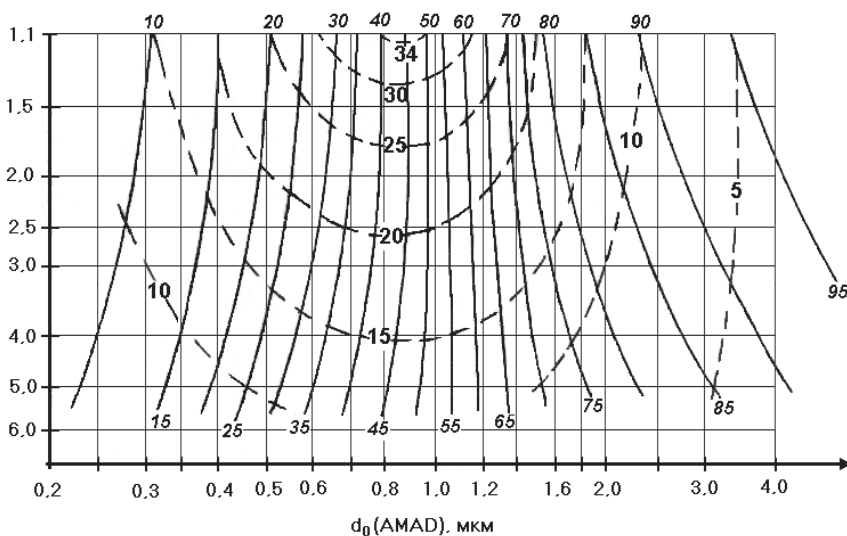


Рис. 18. Номограмма для определения дисперсного состава радиоактивных аэрозолей. Сплошные линии – доля активности, задержанная первым фильтром, прерывистая линия – доля активности, задержанной вторым фильтром. Третий фильтр улавливает все частицы, прошедшие через первые два фильтра. Комплектация АФА-1: 1-й слой (голубой) – стандартное сопротивление $\Delta p_0 = 1$ Па·с/см; 2-й слой (розовый) – $\Delta p_0 = 1,7$ Па·с/см; 3-й слой (белый) – $\Delta p_0 = 20$ Па·с/см. Линейная скорость – 100 см/с. Цифры у сплошных линий – доля активности (%) на 1-м слое; цифры у пунктирных линий – доля активности (%) на 2-м слое

Диапазон определяемых с помощью ММФ размеров частиц зависит от скорости отбора проб и выбранной композиции пакета фильтров. В методе, основанном на свойствах инерционного улавливания аэрозольных частиц, все ограничения вытекают из начала и окончания действия этого механизма. Так, если число Стокса меньше 0,2, инерционный захват отсутствует, поэтому при скоростях ниже 0,5 м/с метод неэффективен. Очевидно, проведение дисперсного анализа с помощью ММФ невозможно, если практически все частицы будут задержаны первым фильтром 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.

При скорости отбора проб около 1,5 м/с и стандартном сопротивлении первого слоя 1,2 Па·с/см возможен анализ размеров частиц в диапазоне 0,1–2 мкм. Снизив скорость до 0,5 м/с и уменьшив сопротивление первого фильтра (слоя) до 0,8–1 Па·с/см, можно определить частицы с медианным диаметром до 7–8 мкм.

Диапазон размеров аэрозольных частиц, представляющий интерес для дозиметрии внутреннего облучения, составляет 0,05–10 мкм. Импактор наиболее эффективен при анализе частиц микронного диапазона, в субмикронной области использование ММФ может быть предпочтительным.

К преимуществам ММФ следует отнести следующее.

Методическую простоту отбора и анализа проб. Персонал, использующий в своей практике аналитические аэрозольные фильтры (например, АФА), не испытывает трудностей при применении ММФ. Вместо одного фильтра в фильтродержатель устанавливается пакет из трех фильтров. Измерение фильтров пакета производится так же, как и в случае использования фильтров АФА. При этом используется стандартная пробоотборная аппаратура.

Высокие скорости отбора проб и, следовательно, возможность анализа характеристик радиоактивных аэрозолей с низкой объемной активностью.

Отсутствие ограничения на площадь фильтров. При необходимости она может составлять 1 м² и более.

Из особенностей применения ММФ отметим необходимость выдерживать постоянную линейную скорость отбора пробы, так

как изменение скорости ведет к изменению фильтрующих характеристик пакета и к появлению ошибок при определении параметров ЛНР. Заметим, что импактор также требует постоянной скорости отбора пробы.

ММФ имеет следующие *недостатки*.

Реальный спектр размеров радиоактивных аэрозолей вовсе не обязательно является логарифмически нормальным. При отсутствии априорной информации о типе спектра размеров задача его нахождения является некорректно поставленной. Трех точек для восстановления реального спектра при наличии «плохих» ядер системы интегральных уравнений явно недостаточно. Здесь импактор имеет преимущество перед ММФ из-за большего числа каскадов и «хороших» ядер уравнений, близких к ступенчатым функциям. Заметим, что даже при таких ядрах уравнения восстановление полимодального спектра без априорной информации затруднительно.

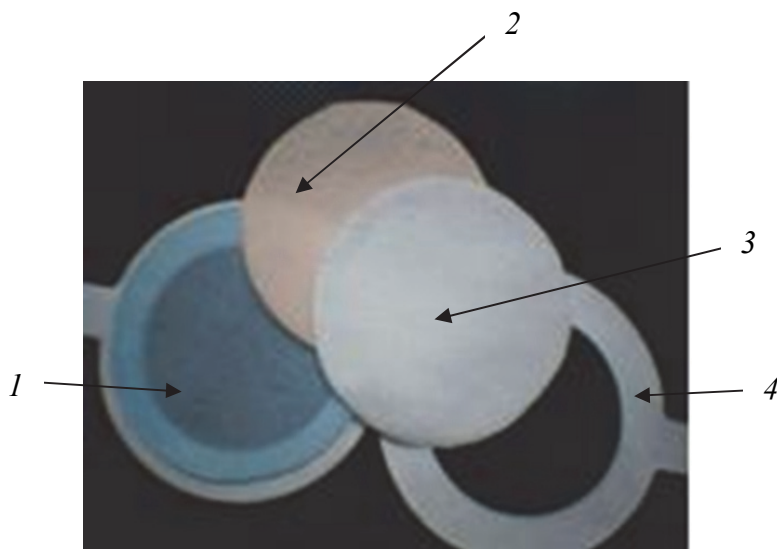


Рис. 19. Фильтры АФА-3ДА для анализа дисперсности аэрозолей (слои 1–3) с фильтром для улавливания газообразного йода (слой 4). $S = 20 \text{ см}^2$.
Изготовитель – ГНЦ РФ НИФХИ им. Л.Я. Карпова

Если запыленность воздуха велика или пробоотбор проводят длительное время, то фильтры (особенно первый слой) забиваются

пылью, что приводит к изменению фильтрующих характеристик пакета и, в конечном итоге, к ошибке при определении параметров ЛНР. Поэтому, как только запыленность начинает сказываться на скорости отбора пробы, следует прекратить дальнейшую прокачку или заменить комплект фильтров на аналогичный. Допустимо снижение скорости на 10 %. Вышесказанное означает, что контроль скорости прокачки через пакет фильтров должен быть непрерывным или, по крайней мере, довольно частым, чтобы не пропустить момент окончания отбора или замены пакета фильтров.

Вид трех фильтров (голубой, розовый, белый) для анализа дисперсности аэрозолей в габаритах аналитических фильтров АФА приведен на рис. 19. Здесь же показан фильтр для улавливания газообразного йода (полимерные волокна и мелкодисперсный сорбент- активированный уголь ОУ-А, импрегнированный AgNO_3).

Контрольные вопросы к разд. 7.3.2

1. Какое уравнение описывает методы восстановления функции распределения аэрозольных частиц по размерам по данным измерений? Каким необходимым свойством должна обладать функция отклика этого уравнения?
2. Почему для исследования дисперсности радиоактивных аэрозолей не предназначены методы, основанные на светорассеянии?
3. Объясните принцип работы каскадного импактора.
4. Укажите типичный диапазон размеров, определяемых каскадным импактором, количество каскадов и объемную скорость потока.
5. Объясните сущность ММФ для анализа дисперсности аэрозолей.
6. Можно ли восстановить функцию распределения аэрозольных частиц по размерам ММФ без априорной информации о виде распределения?
7. Укажите размерный диапазон, определяемый ММФ.
8. Какие ограничения существуют на объемную скорость прокачки воздуха через пакет фильтров в ММФ?

7.3.3. Дисперсный состав некоторых естественных и техногенных радиоактивных аэрозолей

Естественные радиоактивные аэрозоли. Радон, торон и актинон присутствуют в воздухе благодаря естественным радиоактивным элементам – тяжелым металлам. Например, из урана в результате радиоактивных превращений появляется радий-226 (металл), который при альфа-распаде переходит в радон-222. Ввиду того, что радон – инертный газ, он не задерживается полностью в почве или воде, а попадает в атмосферу. Аналогичным образом ведут себя торон (^{220}Rn), образующийся в результате распада ^{232}Th , и актинон (^{219}Rn) – продукт распада ^{227}Ac . Вследствие этого дальнейшие элементы в цепочках распада (Po, Bi, Pb) оказываются в виде свободных атомов, которые либо осаждаются на атмосферных ядрах конденсации, образуя радиоактивные аэрозоли, либо соединяются в молекулярные кластеры или остаются в атомарном состоянии, т.е. в виде «неприсоединенной» активности. Объемная активность дочерних продуктов, находящихся в виде «неприсоединенной» активности или аэрозолей, зависит не только от содержания металлов-предшественников в почве, но и от атмосферных условий. Очевидно, доля «неприсоединенной» активности снижается с ростом концентрации ядер конденсации.

Ввиду того, что дочерние продукты радона (ДПР) накапливаются в неветилируемых подвалах жилых зданий, на урановых рудниках и т.д. порой до опасных концентраций, было проведено множество исследований их свойств, включая и распределение по размерам. Как правило, для нахождения размеров кластеров используются диффузионные батареи и анализаторы частиц по подвижности в электрическом поле, а для аэрозольных частиц – импакторы и пакеты волокнистых фильтров.

Так, установлено, что размеры молекулярных кластеров полония и свинца лежат в нанометровом диапазоне, причем имеются два пика в распределении: один в области 0,9–2,0 нм и другой – в области 10 нм и более, а АМАД аэрозолей ДПР находится в области 0,03–0,35 мкм. Очевидно, столь широкий диапазон объясняется различием в свойствах нерадиоактивных ядер конденсации, а также в методах измерения. Радионуклиды ^{212}Pb и ^{214}Pb обнаруживают на аэрозольных частицах с АМАД от 0,08 до 0,2 мкм. Эти измерения

выполнялись в различных местах, включая объект «Укрытие» Чернобыльской АЭС. Иногда фиксировали увеличение размеров до 0,8 мкм. В диапазон размеров 0,04–0,12 мкм попадают результаты измерений аэрозолей ^{212}Pb , ^{214}Pb , ^{212}Bi и ^{214}Bi в приземном слое атмосферы вдоль железнодорожной трассы Москва–Хабаровск, полученные в процессе совместной российско-германской экспедиции ТРОИКА в 1999–2000 гг.

В целом, можно констатировать, что аэрозоли ДПР ассоциированы с крайне мелкими носителями, что следует учитывать при выборе аналитических фильтров для отбора проб и для оценки эффективных доз внутреннего облучения.

В отличие от аэрозолей – дочерних продуктов радона – естественные радиоактивные аэрозоли *фосфора, серы и бериллия* образуются в верхних слоях атмосферы и являются удобными метками атмосферных процессов. С помощью ММФ найдено, что радиоактивные изотопы этих элементов в целом связаны с более крупными частицами-носителями, чем ДПР. Например, изотоп ^7Be в приземном слое атмосферы вблизи Ленинградской АЭС обнаружен на частицах с АМАД = 0,22–0,24 мкм при $\sigma = 1,6\text{--}2,5$. В приземном слое атмосферы 30-км зоны Чернобыльской АЭС этот радионуклид обнаруживался на частицах с АМАД = 0,70 мкм, а в окрестности Вильнюса – на частицах с АМАД = 0,64–0,80 мкм. В табл. 10 приведены результаты экспериментов по исследованию дисперсности ^7Be в окрестностях Вильнюса (Литва) и во время полета самолета АН-24РР над северо-западными регионами России. В этой же таблице представлены результаты определения дисперсности аэрозолей, содержащих радионуклиды фосфора и серы. Обращает на себя внимание факт, что растворимые и нерастворимые формы нуклидов сосредоточены на разных носителях. Об определении типов растворимости аэрозолей см. разд. 7.4.

Искусственные радиоактивные аэрозоли. Проблема защиты от искусственных радиоактивных аэрозолей возникла еще в период разработки и испытаний ядерного оружия. Для ее решения потребовалось провести обширные исследования свойств аэрозолей. В период становления атомной промышленности и энергетики исследования радиоактивных аэрозолей стали вестись еще более глубоко, благодаря чему к настоящему времени все АЭС, исследовательские атомные реакторы, критические сборки и т.д. оснащены фильтрующими системами, снижающими выход радиоактивных газов и аэрозолей до безопасного и контролируемого уровня.

**Дисперсный состав естественных радиоактивных аэрозолей
⁷Ве, ³²Р, ³³Р и ³⁵S в окрестности Вильнюса и на северо-западе России¹**

ПРОБЫ, ВЗЯТЫЕ В ОКРЕСТНОСТИ ВИЛЬНЮСА						
Нуклид	7–8.04.90		17–20.04.90		18–21.06.90	
	АМАД, мкм	σ	АМАД, мкм	σ	АМАД, мкм	σ
⁷ Ве	0,80	2,01	0,64	2,39	0,68	1,64
⁷ Ве (р)	0,30	2,60	0,36	1,30	0,33	1,03
⁷ Ве (н)	1,00	1,70	1,18	1,70	0,82	1,44
³² Р	–	–	0,48	1,64	0,38	2,52
³² Р (р)	–	–	< 0,30	–	0,27	1,44
³² Р (н)	–	–	1,30	1,80	1,45	7,78
³³ Р	–	–	0,82	4,51	0,76	9,00
³³ Р (р)	0,10	–	< 0,30	–	0,20	3,72
³³ Р (н)	–	–	1,40	–	5,07	–
³⁵ S	–	–	0,68	2,22	1,30	2,60
³⁵ S (р)	0,30	1,90	0,70	1,80	1,94	2,78
³⁵ S (н)	0,40	1,30	0,68	1,70	1,04	2,95
ПРОБЫ, ВЗЯТЫЕ С САМОЛЕТА В СЕВЕРО-ЗАПАДНОЙ РОССИИ						
Нуклид	29.11–7.12.89, высота 5 км		12–28.06.90, высота 6 км		24–26.10.90, высота 5,7 км	
	АМАД, мкм	σ	АМАД, мкм	σ	АМАД, мкм	σ
⁷ Ве	0,30	1,40	0,16	3,94	0,08	5,01
⁷ Ве (р)	0,46	1,2	0,07	4,77	0,03	–
⁷ Ве(н)	0,24	1,50	0,40	1,90	0,12	1,85
³² Р	–	–	0,12	2,82	0,28	1,76
³² Р (р)	–	–	0,26	1,24	0,30	1,70
³² Р (н)	0,30	1,20	0,09	3,17	0,19	2,35
³³ Р	–	–	0,20	1,94	0,08	2,69
³³ Р (р)	–	–	0,25	1,04	0,13	1,42
³³ Р (н)	0,28	1,20	0,30	2,53	0,08	3,08
³⁵ S	0,32	1,20	0,34	2,68	0,80	–
³⁵ S (р)	–	–	0,11	–	–	–
³⁵ S ⁵ (н)	0,28	1,70	0,49	1,32	0,61	3,75

* (р) – растворимая, (н) – нерастворимая компоненты.

¹ Lujaniene G., Ogorodnikov B., Budyka A. // J. Environm. Radioact. 1997. 35. 1. 71–90.

**Дисперсность радиоактивных аэрозолей,
характерных для атомной промышленности¹**

Отрасль	Количество измерений	Диапазон АМАД, мкм	Медиана распределения АМАД, мкм	Стандартное геометрическое отклонение
Все рабочие места	160	0,12–25	4,4	1,8
АЭС	39	0,28–7,2	3,9	1,4
Урановая промышленность	13	0,5–16	6,8	2,4
Производство ядерного топлива	57	0,34–16,5	3,8	1,8

В случае, если дисперсность радиоактивных аэрозолей на рабочих местах неизвестна, Публикация 66 МКРЗ рекомендует исходить из величины АМАД = 5 мкм. Множество измерений величин АМАД, выполняемые в течение более тридцати лет на урановых рудниках, на предприятиях по обогащению топлива, по изготовлению твэлов, по переработке и хранению радиоактивных отходов, на АЭС и исследовательских реакторах, хранилищах отработанного топлива и др., были обработаны и сведены в табл. 11. Заметим, что в атомной энергетике среднее значение АМАД составляло около 4 мкм, а на урановых предприятиях присутствуют более крупные частицы.

Для оценки временных изменений дисперсности данные были сгруппированы по десятилетиям и вновь обработаны. Оказалось, что в 60-е годы медиана АМАД составляла 5,8 мкм, в 70-е – 2,9 мкм, в 80-е – 5,4 мкм, а в период с 1990 до 1994 г. – 3,3 мкм. Таким образом, тенденции к изменению АМАД во времени не наблюдается.

В. Gilbert с коллегами с помощью импакторов выполнил измерения дисперсности в моменты превышения допустимых концентраций на заводе по извлечению урана из концентрата урановой руды. Таких инцидентов в 1996 г. зафиксировано семь. Было установлено, что в эти периоды плотность частиц составляла 6 г/см^3 , а соединения урана принадлежали к быстрорастворимым (класс Б). Результаты исследований представлены в табл. 12.

¹ Dorrian M.-D., Bailey M. R. // Radiat. Prot. Dosimetry. 1995. 60. 2. 119–133.

**Дисперсность и классы растворимости аэрозолей – соединений урана
в процессе инцидентов на предприятии по извлечению урана из концентрата¹**

№ инцидента	Операция	Соединение урана	АМАД, мкм	Класс растворимости
1	Осаждение	UO ₃	5	Б
2	Фторирование	UO ₃ , UF ₄	6,8	40 % Б, 60 %П
3	Фторирование	UO ₃ , UF ₄	6,8	40 % Б, 60 %П
4	Фторирование	UO ₃ , UF ₄	6,8	Б
5	Регенерация	UO ₃ , UF ₄ , U ₃ O ₈	5	Б
6	Очистка	UO ₃ , UF ₄ , U ₃ O ₈	5	Б
7	Фторирование	UO ₃ , UF ₄ , U ₃ O ₈	5	Б

Исследования дисперсного состав радиоактивных аэрозолей в технологической вентиляции исследовательских реакторов ИРТ и ВВР-М с помощью ММФ (отобрано около 100 проб аэрозолей) показали присутствие там радионуклидов как осколочного, так и активационного происхождения. На наиболее мелких частицах обнаружены радионуклиды рубидия, цезия, бария, имеющие газовых предшественников в изобарных цепочках распада: АМАД = 0,16–0,46 мкм при $\sigma = 1,4\text{--}2,1$. Радионуклиды циркония, ниобия, стронция, церия, молибдена и теллура были связаны с частицами, АМАД которых лежал в диапазоне 0,46–0,82 мкм при значении геометрического стандартного отклонения 2,1. Активационные нуклиды (натрий, хром, марганец) обнаруживали на аэрозолях с АМАД от 0,20 до 0,90 мкм. АМАД аэрозолей йода составлял величину 0,5–0,7 мкм.

На реакторе РБМК-1000 (Ленинградская АЭС) с помощью ММФ исследовали дисперсность аэрозолей как в вентиляции, так и в приземном слое атмосферы вблизи станции. В воздуховодах системы вентиляции были определены размеры радиоактивных аэрозолей как осколочного, так и активационного происхождения. Наименьшими размерами (АМАД = 0,24 мкм) обладал ¹³¹I, а также ⁵¹Cr (0,30 мкм). Остальные радионуклиды (марганец, кобальт, железо, цинк, цирконий, ниобий и цезий) были связаны с частицами, АМАД которых лежал в пределах 0,48–0,80 мкм. Во внешней среде размеры оказались несколько большими: хром обнаружен на частицах-носителях с АМАД = 0,3–0,6 мкм, остальные (за исключе-

¹ Gilbert B. et al. // Radiat. Prot. Dosim. 1998. 79. 1–4. 77–81.

нием йода, который не был обнаружен) – на частицах с АМАД = 0,6–1,0 мкм.

Таким образом, в вентиляционных системах реакторов и АЭС и в приземном слое атмосферы вблизи станции радионуклиды связаны с существенно более мелкими частицами по сравнению с тем, что измеряются на предприятиях атомной промышленности.

В ходе ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС 1986 г. и в процессе последующих 20-летних исследований газозеролевых продуктов аварии большое внимание уделяли исследованиям дисперсности радиоактивных аэрозолей. Практически все исследования были выполнены с использованием ММФ.

В табл. 13 приведены средние значения АМАД аэрозолей, измеряемые на протяжении 20 лет после аварии.

На рис. 20 представлены осредненные по точкам отбора проб результаты многолетнего мониторинга АМАД радиоактивных аэрозолей в 5-км зоне вокруг Чернобыльской АЭС. На этом же рисунке приведены измеренные там же значения АМАД естественных аэрозолей космогенного бериллия и свинца – дочернего продукта радона. Как следует из представленных данных, уже к сентябрю-октябрю 1986 г. АМАД аэрозолей аварийного происхождения увеличился от субмикронных величин до значений 3–8 мкм и оставался впоследствии стабильным в этом диапазоне. Определяющим механизмом аэрозолей микронного диапазона был вторичный подъем с загрязненных поверхностей вследствие природных и техногенных воздействий, т.е. диспергационный. АМАД естественных радиоактивных аэрозолей ^{212}Pb менялся от 0,08 до 0,25 мкм, а ^7Be – от 0,12 до 0,48 мкм: эти аэрозоли по своим характеристикам не отличались от отобранных в различных точках мира.

Дисперсный состав радиоактивных аэрозолей, образованных в результате аварии АЭС в Фукусиме (2011 г.), измеряли в Праге с помощью 5-каскадного импактора Sierra Andersen SA. В период между 24 марта и 13 апреля 2011 г. выполнено пять серий измерений, и осредненные данные по АМАД приведены на рис. 21. Так же, как и при измерениях аэрозолей Чернобыльского генезиса, определяли АМАД естественного аэрозоля ^7Be .

**Дисперсность аэрозолей Чернобыльского происхождения в 1986–2005 гг.
(работы сотрудников лаборатории аэрозолей НИФХИ им. Л.Я. Карпова
1987–2005 гг.)**

Места отбора проб, период	Среднее значение АМАД, мкм, радионуклиды	Особенности
Над разрушенным реактором IV блока (май 1986 г.)	0,2 (йод, теллур, рутений) 0,7 (все остальные нуклиды)	Крайняя нестабильность объемной активности (ОА) и радионуклидного состава аэрозолей
Глобальный мониторинг (апрель-май 1986 г.)	0,3–0,5 (йод)	Доля газообразных компонентов варьирует в пределах 0,2–0,9
Дальняя зона (май 1986 г.)	0,4 (все радионуклиды)	Крайняя нестабильность ОА и радионуклидного состава
Промплощадка (лето 1986 г.)	2,6 (рутений) 2,9 (остальные нуклиды)	Сильные вариации АМАД. Бимодальность спектров размеров
Над разрушенным реактором IV блока (август-сентябрь 1986 г.)	0,84 (рутений) 1,06–1,7 (цезий, церий, цирконий, ниобий)	Стабильность ОА. Высокая положительная корреляция между ОА альфа-активных и гамма-излучающих радионуклидов
Помещения 3 блока ЧАЭС (1986–1987 гг.)	1–12 (все радионуклиды)	АМАД сильно зависит от характера дезактивационных работ
Промплощадка и 5-км зона (1986–1992 гг.)	2–7 (рутений)	Сильные колебания АМАД; Зависимость от пунктов отбора проб
30-км зона вокруг ЧАЭС (1992–2005 гг.)	5–7 (цезий, церий, плутоний, стронций, америций)	Независимость АМАД от сезонных факторов; зависимость АМАД от места отбора проб; преобладание нерастворимых форм
Пожары в 30-км зоне (лето 1992 г.)	0,7 и 4,1 0,4 и 9,9 (цезий, стронций)	Существенный рост ОА; рост доли водорастворимых форм цезия; бимодальность спектров
Глобальные выпадения и дальний перенос (1989–1991 гг.)	0,7–1,0 (все радионуклиды)	Измерения в приземном слое атмосферы и в нижней тропосфере на чистых территориях России
5-км зона вокруг ЧАЭС (1987–1992 гг.)	0,4–1,2 (йод)	Эпизодическая регистрация йода – продукта эксплуатации работающих энергоблоков

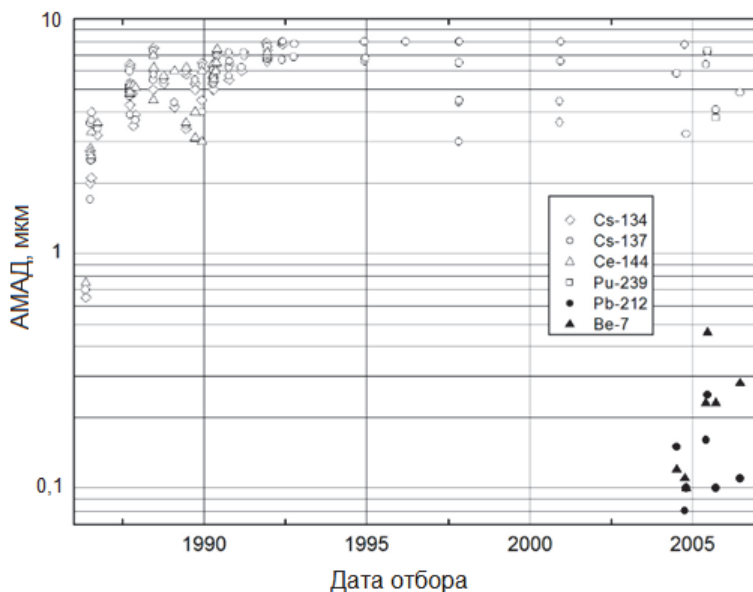


Рис. 20. Эволюция АМАД аэрозолей – продуктов аварии на ЧАЭС и дисперсность естественных радиоактивных аэрозолей, отобранных в приземном слое воздуха вблизи ЧАЭС¹

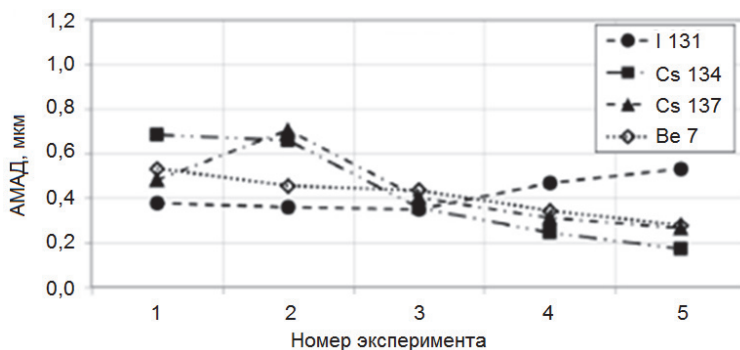


Рис. 21. АМАД аэрозолей – продуктов аварии на АЭС в Фукусиме, отобранных в Праге²

¹ Budyka A.K., Ogorodnikov B.I. // In Aerosols Handbook. Second Edition. Chapter 18. N.Y.: CRC Press, 2012. P. 473–502.

² Mala H. et.al. // J. Environm. Radioact. 2013. 126. 92–98.

Как следует из рис. 21, продукты Фукусимской аварии были сосредоточены на субмикронных носителях практически такого же размера, что и чернобыльские аэрозоли в начальный период аварии. Это свидетельствует о том, что вовлекаемые в дальний перенос радионуклиды конденсационного происхождения находятся на частицах носителей примерно одного размера в субмикронном диапазоне (0,2–0,7 мкм). Такие размеры наиболее устойчивы в атмосфере.

Отметим, что практически одинаковые данные по АМАД аэрозолей в двух авариях получены и с помощью импактора, и с помощью ММФ, что говорит об надежности обоих методов.

Данные, приведенные в настоящем разделе, свидетельствуют о необходимости измерять дисперсность аэрозолей для снижения ошибок при определении эффективных доз за счет ингаляционного поступления радионуклидов в организм. Безусловно, такие измерения оправданы лишь в тех случаях, когда объемные активности аэрозолей превышают установленные контрольные уровни, сравнимые по порядку величины с предельно допустимыми. Такие ситуации имеют место не только в аварийных ситуациях, но и при проведении работ в необслуживаемых помещениях различных объектов использования атомной энергии, включая АЭС.

Контрольные вопросы к разд. 7.3.3

1. Какие могут быть причины того, что АМАД аэрозолей ДПР меньше, чем АМАД аэрозолей бериллия, фосфора и серы?
2. Оправдана ли рекомендация МКРЗ при невозможности определить АМАД аэрозолей на рабочих местах использовать в расчетах значение 5 мкм?
3. Почему размеры естественных аэрозолей ближе к первичным аварийным аэрозольным осколочным нуклидов, чем к вторичным аэрозольным?

7.4. Определение растворимости радиоактивных аэрозолей

Как отмечено в разд. 3, химические соединения нуклидов в составе аэрозолей разделяются в зависимости от скорости перехода из легких в кровь на три типа растворимости. Для отнесения исследуемого вещества к одному из трех типов химического соединения при ингаляции допустимо использование упрощенной методики *in vitro*, в которой оценивается скорость диализа радиоактивных аэрозолей в модельной среде. Для этого через установленные временные интер-

валы измеряются доли активности исследуемого вещества, перешедшего в имитатор легочной жидкости (ИЛЖ) через мембраны.

В ходе анализа проба (волоknистый фильтр) с исследуемым аэрозолем помещается в ячейку с мембранами, пропускающими только объекты молекулярных размеров (рис. 22). Данная ячейка помещается в ИЛЖ (раствор Рингера) объемом 150 мл, состоящий из хлоридов натрия, калия, кальция и NaHCO_3 .

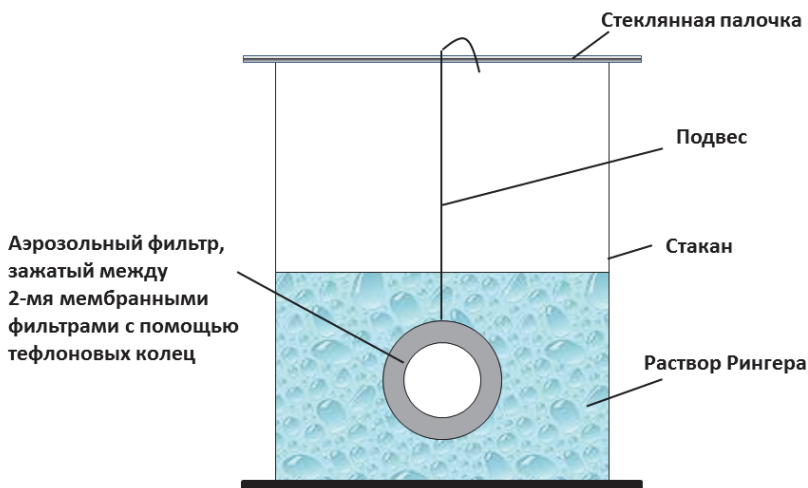


Рис. 22. Стакан с раствором Рингера и диализной ячейкой¹

Таблица 14

Критерии отнесения вещества к одному из типов химического соединения при ингаляции²

Время после начала эксперимента, сут	Количество радионуклида, перешедшее в раствор (с учетом распада), %	Тип химического соединения при ингаляции
0–30	> 83	Б
30–180	12–83	П
> 180	< 12	М

¹ Определение распределения соединений элементов по типам при ингаляции радиоактивных аэрозолей. Методические указания по методам контроля. ФМБЦ им. А.И. Бурназяна 06.25/4.2021. 32 с.

² ICRP Publication 71 // Annals of the ICRP. 1995. 25. № 3–4.

Стакан с диализной ячейкой для имитации температуры человеческого тела (37 °С) размещают в климатической камере. Замену имитатора легочной жидкости, в который перешла активность, на свежий ИЛЖ проводят через 1 ч после начала эксперимента, а также через определенное количество суток (от 1 до 180). Тип соединения определяют по скорости перехода радиоактивного вещества в раствор. В табл. 14 приведены характеристики отнесения соединений к типам растворимости. Так, при переходе в раствор, окружающий ячейку, свыше 83 % начальной активности (с учетом распада) за период ≤ 30 сут исследуемое вещество относится к типу Б.

В разд. 7.4 приведено краткое описание метода определения растворимости. Подробное изложение содержится в методических указаниях МУ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна № 06.25/4 (2021 г.). Неопределенность определения типов соединений не превышает 42 %.

7.5. Структура индивидуальных аэрозольных частиц

В ряде случаев, например при прогнозировании миграции радионуклидов, попавших в окружающую среду или в органы дыхания в составе аэрозольных частиц, необходимо иметь информацию о структуре радиоактивных аэрозольных частиц. Ввиду того, что их размеры крайне малы, простых методов определения формы частиц, их удельной поверхности, кажущейся плотности, характера распределения массы и активности в частице и т.д. не существует. Как правило, такие исследования проводятся с использованием совокупности нескольких методов.

Предположим, что аэрозольные частицы отобраны на фильтр. Простое взвешивание фильтра до и после отбора пробы позволит определить массовую концентрацию аэрозоля. Но эта величина не информативна, если требуется найти характеристики радиоактивного аэрозоля: определенная массовая концентрация относится не к радиоактивным, а ко всем частицам, находящимся во взвешенном состоянии, причем неактивных частиц может быть на несколько порядков величины больше, чем частиц, содержащих радионуклиды.

Задача может быть решена, если размеры радиоактивных частиц описываются логарифмически нормальным распределением. Для определения характера распределения активности в частице потребуется разделение отобранного аэрозоля на размерные фракции с помощью импактора или отбор на пакет фильтров для дисперсного анализа (ММФ). Опишем порядок действий при использовании ММФ.

Так как радиоактивный аэрозоль распределен по трем фильтрам пакета, для определения параметров ЛНР требуется исследовать частицы отдельно на каждом фильтре. Для подсчета радиоактивных частиц можно использовать автораддиографический метод.

Каждый из трех фильтров размещают на стеклянных пластинах и растворяют подходящим растворителем (например, полимерные волокнистые фильтрующие материалы ФП обрабатывают дихлорэтаном или ацетоном). Полученные препараты приводят в плотный контакт с фотопластинкой, чувствительной к ионизирующему излучению (типа МР), и после продолжительной экспозиции (около 20 дн.) отделяют растворенный фильтр от пластинки, которую затем дополнительно экспонируют с эталонным источником активности. После проявления пластинки подсчитывают «изображения» аэрозольных частиц: темные пятна от бета-активных аэрозолей и «звезды» от альфа-активных аэрозолей, а также композиции «темное пятно-звезда» (рис. 23).

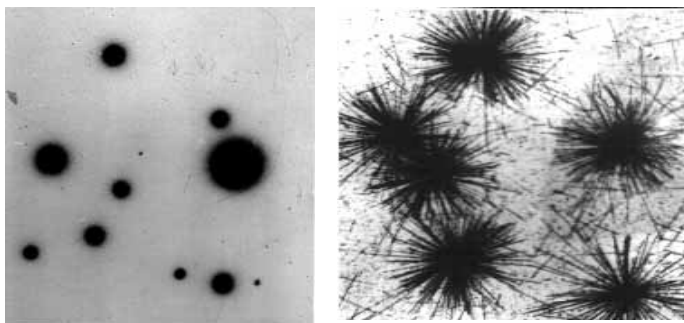


Рис. 23. Автораддиографические изображения бета- и альфа-активных аэрозолей

Диаметр пятна почернения связан с размером аэрозольной частицы. Если значения диаметров нанести в вероятностно-логарифмических координатах, прямая линия будет означать, что распределение подчинено логарифмически нормальному закону. В соответствии с формулой (17) остальные характеристики также описываются ЛНР и соотносятся между собой через параметр уравнения p . Поэтому выбрав из отобранных проб лишь те, которые относятся к ЛНР, можно в дальнейшем определить параметры счетного распределения аэрозолей по размерам (количество пятен на первом, втором и третьем фильтрах), а также АМАД.

Отобранные на пакеты фильтров в приземном слое воздуха вблизи Чернобыльской АЭС в 1989–1991 гг. аэрозольные пробы после описанного выше анализа позволили установить, что параметр p уравнения (17), определенный из сопоставления счетного и активностного распределений, оказался меньше единицы. В некоторых опытах он был близок к нулю (счетное и активностное распределение практически совпадали). Это означало, что радиоактивное включение в неактивный носитель могло находиться как на его поверхности, так и внутри. Размеры частицы-носителя существенно меньше пробега альфа-частиц в среде с плотностью $2,5 \text{ г/см}^3$ (предполагается, что носители – частицы атмосферной пыли), так как в опытах наблюдали «звезды» без перекосов, обусловленных потерей энергии.

Из характеристик логарифмически нормального распределения по размерам и параметру p уравнения (17), приведенных на с. 28–29, также следует: если активность была бы равномерно распределена по поверхности частицы, значение p равнялось бы двум, а при $p = 3$ активность равномерно распределена по объему частицы.

Таким образом, сочетание методов авторадииографии и ММФ позволяет определить характер распределения активности в частице.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Авторы надеются на то, что материал, представленный в пособии, даст представления о классификации и основных свойствах аэрозолей, о сходстве и различии этих свойств у природных и техногенных аэрозолей, об особенностях появления и трансформации радиоактивных аэрозолей.

Наука об аэрозолях (aerosol science) отличается, прежде всего, междисциплинарным характером. Для описания образования аэрозолей, объяснения их свойств и поведения необходимо владеть методами гидродинамики, физической химии, оптики, механики, электродинамики, молекулярной физики и других научных дисциплин. Разработка средств и методов защиты от радиоактивных аэрозолей требует, помимо перечисленных, знаний таких дисциплин, как дозиметрия и спектрометрия ионизирующих излучений, радиационная гигиена и др.

Очень важной задачей науки об аэрозолях, напрямую связанной с метеорологией, является моделирование процессов, происходящих в аэрозольном источнике, и переноса радиоактивных аэрозо-

лей в технологических коммуникациях, помещениях, в приземном слое атмосферы ближней и дальней зон. Моделирование переноса радиоактивных веществ позволяет оценить не только последствия аварийных выбросов (формирование загрязнения земной поверхности), но и дозовые нагрузки на население, проживающее на загрязненных территориях. Вопросам аэрозольной безопасности, составной частью которой является такое моделирование, будет посвящено отдельное учебное пособие, работа над которым ведется.

Для углубленного изучения свойств аэрозолей приводим перечень монографий и учебных пособий, написанных российскими и зарубежными авторами.

РЕКОМЕНДУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Амелин А.Г. Теоретические основы образования тумана при конденсации пара. Изд. 3-е. М.: Химия, 1972. 304 с.
2. Будыка А.К., Борисов Н.Б. Волокнистые фильтры для контроля загрязнения воздушной среды. М.: ИздАТ, 2008. 360 с.
3. Грин Х, Лейн В. Аэрозоли – пыли, дымы, туманы. Л.: Химия, 1972. 428 с.
4. Райст П. Аэрозоли. Введение в теорию. М.: Мир, 1987. 280 с.
5. Рузер Л.С. Радиоактивные аэрозоли. М.: Энергоатомиздат, 2001. 231 с.
6. Фукс Н. А. Механика аэрозолей. М.: АН СССР, 1955. 352 с.
7. Фукс Н.А. Испарение и рост капель в газообразной среде. М.: АН СССР, 1958. 93 с.
8. Aerosol Handbook. Measurement, Dosimetry and Health Effects / Ed. by L. Ruzer and N. Harley. N.Y.: CRC Press, 2005. 710 p.
9. Aerosol Handbook. Measurement, Dosimetry and Health Effects / Ed. by L. Ruzer and N. Harley. Second Edition: CRC Press, Taylor & Francis Group, 2012. 648 p.
10. Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications: P. Kulkarni, P.A. Baron, K. Willeke (Eds). Third Edition. N.Y., John Wiley and Sons. 2011. 900 p.
11. Environmental Chemistry / Ed. J. O'M Bockris. 3-d Ed. Springer, 2012. 796 p.
12. Fine Particles: Aerosol Generation, Measurement, Sampling, and Analysis. Symposium of fine particles, Minneapolis, 1975. B. Y. H. Liu. (Ed.) Academic Press, N.Y., 1976.
13. Fundamentals of aerosol science. D.T. Shaw (Ed). N.Y., Wiley, 1978. 372 p.
14. Handbook of radioactive analysis. Ed. Michael L'Annunziata. Elsevier, 2012. 1379 p.
15. Hinds W. Aerosol Technology. Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles. N.Y.: Wiley, 1982. 424 p.
16. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP publication 66 // Ann. ICRP. 1994. 24. № 1–3. Pergamon. 462 p.
17. Radioactive Aerosols (Radioactivity in the Environment, Vol. 12) 1st Edition by C. Papastefanou, 2008. 172 p.