

На правах рукописи



Рогозина Марина Александровна

**Аппаратура и методика определения дисперсности  
аэрозолей продуктов распада радона**

Специальность 01.04.01 – «Приборы и методы экспериментальной физики»

Автореферат диссертации на соискание ученой степени

кандидата технических наук

Екатеринбург – 2016

Работа выполнена в Институте промышленной экологии  
Уральского отделения Российской Академии наук

Научный руководитель                      доктор технических наук, профессор  
Жуковский Михаил Владимирович

Официальные оппоненты:

Мокров Юрий Геннадьевич, доктор технических наук, ФГУП «ПО Маяк»,  
заместитель главного технолога по науке и экологии

Загайнов Валерий Анатольевич, доктор физико-математических наук,  
ФГАОУ ВПО «Национальный исследовательский ядерный университет  
«МИФИ», кафедра общей физики, профессор

Ведущая организация:

Филиал Акционерного Общества «Ордена Трудового Красного Знамени  
научно-исследовательский физико-химический институт имени Л.Я.  
Карпова», г. Москва

Защита состоится 20 мая 2016 года в 15 часов на заседании диссертационного  
совета ДМ 212.275.03 при Федеральном государственном бюджетном  
образовательном учреждении высшего профессионального образования  
«Удмуртский Государственный Университет» по адресу: г. Ижевск, ул.  
Университетская, д. 1, корп. 4, ауд. 02. <http://udsu.ru/>.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГБОУ ВПО  
«Удмуртский государственный университет» <http://udsu.ru/default/library>.

Автореферат разослан \_\_\_\_\_ 2016 г.

Ученый секретарь диссертационного совета



П.Н. Крылов

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### **Актуальность работы.**

Размеры аэрозольных частиц, присутствующих в любой атмосфере, варьируют от десятых долей нанометров до единиц микрометров. Особую опасность представляют частицы, содержащие атомы радиоактивных веществ, в частности, изотопов радона. Продукты распада радона, тяжелые металлы полоний, свинец, висмут, представляют опасность при ингаляции, являясь альфа- и бета-излучателями. Актуальность работы состоит в том, что для оценки воздействия аэрозольных частиц, содержащих атомы продуктов распада радона, необходима информация не только об объемной активности частиц в атмосфере, но и об их размерном распределении по активности, отличающемся от весового или численного распределения. Это особенно важно для области физически наименьших размеров, поскольку коэффициенты отложения аэрозолей в респираторном тракте и дозовые коэффициенты при ингаляции в этой области меняются особенно резко.

Для определения дисперсности наноразмерных аэрозольных частиц используются приборы, обеспечивающие разделение и детектирование частиц в соответствии с их диффузионными свойствами, в частности, диффузионные батареи. В общем случае диффузионная батарея – это совокупность улавливающих элементов, установленных последовательно или параллельно, характеризуемых разной степенью проницаемости для улавливаемых частиц различных размеров. Для получения размерного распределения аэрозольных частиц по активности предлагается использовать диффузионную батарею каскадного типа с последовательным расположением улавливающих элементов в сочетании с приборами для пробоотбора и радиометрических измерений, а также методом максимизации ожидания для интерпретации данных, полученных в результате измерений активности на улавливающих элементах диффузионной батареи.

## **Цель:**

Разработка аппаратуры и методики определения размерного распределения аэрозолей продуктов распада радона по активности.

## **Задачи работы:**

1. Разработать одноканальную диффузионную батарею, способную обеспечить единовременный отбор пробы на все составляющие ее улавливающие элементы, число которых достаточно для восстановления полимодального размерного распределения аэрозольных частиц.
2. Добиться возможности изменения размерного рабочего диапазона прибора для более полного покрытия диапазона размеров частиц от единиц до сотен нанометров или повышения разрешения в начальной области от десятых долей до десятков нанометров.
3. Выбрать оптимальный для разрабатываемой диффузионной батареи метод восстановления косвенных данных.
4. Провести расчетные эксперименты по моделированию прохождения частиц с заданным размерным распределением через прибор и последующим его восстановлением с помощью выбранных методов.
5. Получить размерное распределение продуктов распада радона-222 в условиях лабораторного бокса.
6. Получить размерное распределение продуктов распада радона-220 в атмосфере пункта хранения монацитового концентрата.

## **Научная новизна:**

1. Впервые разработана одноканальная диффузионная батарея каскадного типа с последовательным расположением двадцати улавливающих элементов и дифференциальным подходом к получению данных, в сочетании с методом

максимизации ожидания для обработки результатов позволяющая получить размерное распределение аэрозольных частиц по активности при единственном пробоотборе.

2. Для разработанного прибора обоснованы оптимальные методы интерпретации данных с целью получения размерного распределения аэрозольных частиц.

3. Впервые обнаружена мода с медианным по активности термодинамическим диаметром 0,3 нм в полученных в лабораторных условиях размерных распределениях аэрозольных частиц, содержащих продукты распада радона-222. В полевых условиях для аэрозольных частиц, содержащих продукты распада радона-220, впервые выделены моды с медианным по активности термодинамическим диаметром 0,3 и 1,5 нм.

#### **Теоретическая и практическая значимость работы:**

1. Разработанный прибор может успешно применяться для оценки дисперсного состава атмосферы, содержащей атомы радиоактивных частиц, в частности, продуктов распада радона, в области от десятых долей до сотен нанометров.

2. Выбранный оптимальный метод для интерпретации данных, испытанный в модельных и реальных экспериментах с диффузионной батареей, может использоваться для других приборов, подразумевающих интерпретацию косвенных данных.

3. Разработанный прибор путем получения достоверной информации о размерном распределении аэрозольных частиц позволяет провести уточнение дозовых коэффициентов при облучении респираторного тракта человека на конкретных рабочих местах, с учетом специфики размерного распределения аэрозолей по активности.

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

- Разработанная одноканальная диффузионная батарея каскадного типа с последовательным расположением двадцати улавливающих элементов и дифференциальным подходом к получению данных позволяет с помощью метода максимизации ожидания получить информацию о многомодальном размерном распределении аэрозольных частиц по активности в диапазоне применимости понятия «термодинамический диаметр аэрозолей».
- Размерное распределение аэрозольных частиц продуктов распада радона-222 и радона-220 содержит в наноразмерной области до пяти мод с медианными по активности термодинамическими диаметрами 0,3; 1,5; 8; 50 нм и крупнодисперсную моду с АМТД порядка 600 нм.
- Ширина раскрытия ячеек и толщина проволоки улавливающих элементов, составляющих диффузионную батарею, могут быть подобраны так, чтоб обеспечить возможность селективной регистрации аэрозолей продуктов распада радона с размером порядка одного атома.

### **Апробация работы.**

Результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях и симпозиумах: международный симпозиум “Naturally Occurring Radioactive Material (NORM VI)” (Марракеш, 2010), третий европейский конгресс “IRPA-2010” (Хельсинки, 2010), седьмая конференция “Protection against radon at home and at work” (Прага, 2013), второй восточноевропейский радоновый симпозиум (Ниш, 2014).

### **Публикации.**

По материалам диссертационной работы опубликовано 8 научных работ, в том числе 4 статьи в научных журналах, 2 статьи в трудах международных конференций.

## **Структура и объем работы.**

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения, списка литературы. Работа изложена на 155 страницах текста, содержит 19 таблиц и 37 рисунков. Библиографический список включает 104 источника, в том числе 87 на английском языке.

## **СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

В **первой главе** представлен обзор существующих методов измерения размерного распределения аэрозолей и интерпретации экспериментальных данных.

Рассмотрено естественное распределение аэрозольных частиц по размеру. Особо отмечено, что такое распределение характеризуется полимодальностью, а размеры частиц каждой моды обусловлены процессами их формирования. Принимая во внимание важность оценки ингаляционного воздействия аэрозольных частиц малого размера (порядка десятых долей и единиц нанометров), выделяется, что в качестве размера несферичных частиц удобно использовать понятие *термодинамического диаметра*. Это диаметр сферической частицы единичной плотности, которая имеет тот же коэффициент диффузии в воздухе, что и рассматриваемая частица.

Проведен краткий обзор инструментов, используемых для измерения дисперсности частиц с диаметром менее 0,1 мкм. Обосновывается выбор диффузионной батареи экранного типа в качестве прибора, способного с достаточным разрешением получить размерное распределение аэрозольных частиц по активности. Уделяется внимание существующим конструкциям диффузионных батарей, обосновываются преимущества дифференциального подхода к получению данных перед интегральным. Дифференциальный подход подразумевает оценку оседания на каждом из улавливающих элементов прибора, тогда как интегральный подход основан на измерении

оседания частиц после прохождения ими большого числа улавливающих элементов.

Подчеркивается, что задача восстановления косвенных данных представляет определенные сложности, так как объем улавливаемых на отдельном элементе частиц напрямую не связан с их размером. Задача формулируется с помощью интеграла Фредгольма первого рода:

$$F(x) = \int_0^Y f(y)K(x, y)dy$$

где  $y$  – параметр, характеризующий размер частиц;  $Y$  – максимальный размер;  $x$  – параметр, учитывающий условия эксперимента и технические характеристики диффузионной батареи;  $f(y)$  – искомая функция реального размерного распределения;  $K(x, y)$  – функция отклика прибора;  $F(x)$  – функция экспериментальных данных об объеме частиц на элементах прибора (для радиоактивных частиц – активность).

Так как функция экспериментальных данных дискретна, более правильно работу прибора представить в виде ряда:

$$F_i = \sum_{j=0}^J K_{ij} \cdot f_j$$

где  $i$  – порядковый номер улавливающего элемента, а  $j$  – номер размерного интервала, на котором определяется высота искомого распределения.

Проведен обзор методов интерпретации косвенных данных, имеющих в литературе, произведена их классификация и оценка их перспективности для восстановления размерного распределения аэрозольных частиц по активности. Выдвинуты критерии выбора метода применительно к задаче восстановления размерного распределения аэрозольных частиц по активности – возможность восстановления полимодального распределения и наложение минимальных ограничений на искомое решение.



Представлена характеристика изотопов радона – радона-220 и радона-222, а также их дочерних продуктов распада (ДПР) – изотопов тяжелых металлов полония, свинца, висмута. Вводятся термины, используемые для характеристики содержания радона в атмосфере:

*Скрытая энергия* - суммарная энергия всех альфа-частиц, испустившихся при распаде всех короткоживущих продуктов распада радона в единице объема воздуха. Величина скрытой энергии пропорциональна мощности эквивалентной дозы, создаваемой продуктами распада радона в легочной ткани.

*Эквивалентная равновесная объемная активность (ЭРОА) радона* для неравновесной смеси короткоживущих продуктов распада в воздухе – такая объемная активность радона в полном равновесии с продуктами его распада, которая имеет такую же величину скрытой энергии, что и данная неравновесная смесь.

*Коэффициент равновесия  $F$*  – отношение эквивалентной равновесной объемной активности радона в воздухе к реальной объемной активности радона. На практике всегда меньше единицы.

Образуюсь в процессе радиоактивного распада, частично заряженные продукты распада радона могут присоединиться к существующим аэрозольным частицам либо участвовать в процессах формирования аэрозолей на разных стадиях. Атомы продуктов распада радона коагулируют с атомными кластерами, содержащимися в атмосфере. В дальнейшем эти частицы могут выступать в виде ядер конденсации, это приводит к тому, что радиоактивные атомы входят в состав аэрозольных частиц всех размеров. Ранее учеными проводились многочисленные исследования по определению дисперсности аэрозолей продуктов распада радона, установлено, что размерное распределение по активности содержит несколько мод,

характеризуемых среднеквадратичным отклонением, долевым содержанием активности и медианным по активности термодинамическим диаметром (АМТД). Для радона-222 выделялись моды с АМТД в области единиц, десятков и сотен нанометров. Также существуют данные о нетривиальности формы кластерной моды с АМТД 1 нм, но методика их получения не совсем ясна (*Porstendorfer J., 2001*). Для радона-220 выделяют моды с АМТД в области десятков и сотен нанометров, более мелкие частицы выделяются как подъем спектра распределения аэрозольных частиц по активности в начальной области (*Cheng et al., 1998*).

Во **второй главе** представлены методы определения объемной активности дочерних продуктов распада радона. Для измерения ЭРОА радона использовались радиометр RAMON-01М и радиометр БДПА-01 в сочетании с методами Маркова и Кузнеця (для радона-222) и методами Маркова-Терентьева и Кузнеця-Терентьева (для радона-220).

В **третьей главе** рассматривается получение размерного распределения аэрозолей продуктов распада радона из измерений объемной активности на улавливающих элементах диффузионной батареи.

Проницаемость элементов батареи для частиц различных размеров рассчитывается с помощью теории фильтрации (*Cheng Y.S., Yeh H.C., 1980*), учитывающей не только диффузию частиц, как преобладающий механизм оседания, но интерцепцию, импакцию и взаимное действие диффузии и интерцепции. Приводятся данные о применимости теории фильтрации на основании различных исследований. Оговариваются ограничения для работы теории – поток воздуха через диффузионную батарею должен быть ламинарным и непрерывным. Приводятся литературные данные по исследованию отсутствия влияния заряда частиц и термического отскока на правильность работы теории.

В соответствии с теорией фильтрации, проницаемость  $i$ -того каскада диффузионной батареи:

$$P_i = \exp(-n\beta\varepsilon),$$

где  $n$  – число сеток в каскаде;  $\beta$  – параметр, зависящий от геометрических характеристик сеток;  $\varepsilon$  – эффективность задерживания частиц, зависящая от параметров улавливающих элементов, а также условий эксперимента. Представлен полный набор уравнений для расчета проницаемости каскадов диффузионной батареи. Далее в главе излагаются термины, используемые при работе с диффузионной батареей, из которых можно выделить:

*Ступень диффузионной батареи* – отдельный улавливающий элемент в сборке, характеризуемый порядковым номером расположения и имеющий характерное индивидуальное удержание для частиц различных размеров.

*Каскад диффузионной батареи* – совокупность ступеней прибора от первой (относительно входного потока воздуха) до ступени с порядковым номером, совпадающим с номером каскада, включительно. Каждый каскад характеризуется кумулятивной проницаемостью и кумулятивным удержанием.

*Диаметр 50% отсекания  $i$ -того каскада  $d50\%_i$*  – диаметр частиц, которые проходят через  $i$ -тый каскад с вероятностью 50% (проницаемость 0,5). Является показательной характеристикой рабочего диапазона прибора.

Представлены формулы для определения основных параметров каскадов и ступеней элементов диффузионной батареи на основании теории фильтрации. Особо следует выделить *индивидуальное удержание  $i$ -той ступени  $IR_i$*  – отношение активности частиц, удержанных на  $i$ -той ступени, к исходной активности частиц, отн. ед.:

$$IR_i = \frac{\Delta C_i}{C_0}$$

На рисунке 1 представлены функции индивидуального удержания ступеней диффузионной батареи.

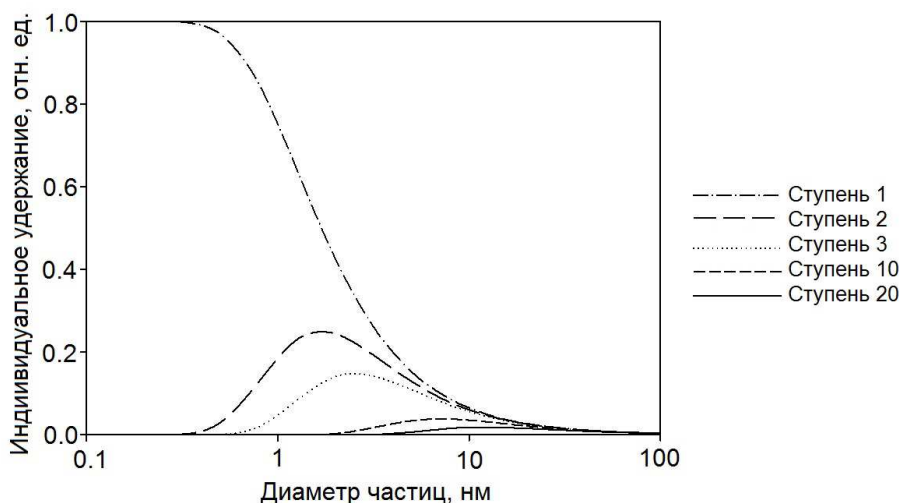


Рисунок 1. Индивидуальное удержание ступеней диффузионной батареи из сеток с толщиной проволоки 65 мкм, шириной раскрытия ячейки 100 мкм и плотностью 8,5 г/см<sup>3</sup> при расходе воздуха 30 л/мин.

Матрица отклика  $K_{ij}$  определенной диффузионной батареи формируется следующим образом: выбирается рабочий размерный диапазон, на котором производится восстановление искомого размерного распределения, при этом учитываются частицы, вероятность оседания которых на диффузионной батарее выше 5%. Рабочий диапазон разделяется на интервалы, равноудаленные на логарифмической шкале размеров частиц. Их число совпадает с числом точек данных, получаемых с диффузионной батареей. Для частиц с размером, соответствующим началу каждого размерного интервала, рассчитывается индивидуальное удержание для каждой ступени диффузионной батареи. Из этих значений формируется матрица отклика, где строкам соответствует  $j$ -тый размерный интервал, а столбцам –  $i$ -тая ступень диффузионной батареи.

Глава завершается выбором метода восстановления данных, получаемых с диффузионной батареи. Описываются методы, применяемые нами ранее, в их числе метод обратной матрицы и графический метод, оказавшиеся несостоятельными. После тестирования методов, представленных в литературе, на основе моделирования прохождения частиц с распределением заданной формы через диффузионную батарею, были выбраны два метода, один из которых – метод наименьших квадратов (НК), подразумевающий решение выражения вида:

$$\min_{f \in G} \left\{ \sum_{i=1}^I \left[ \sum_{j=1}^J K_{ij} f_j - F_i \right]^2 \right\}$$

Второй из выбранных – метод максимизации ожидания (МО), основанный на теории вероятности. Полная формула для итерации выглядит следующим образом:

$$\hat{f}_j^{new} = \frac{\hat{f}_j^{old}}{F_0 \cdot K_{+j}} \cdot \sum_i \left( \frac{F_{i+} \cdot K_{ij}}{\sum_j K_{ij} \cdot \hat{f}_j^{old}} \right)$$

Здесь  $\hat{f}_j^{new}$ ,  $\hat{f}_j^{old}$  - значения искомой функции распределения на интервале  $j$ ;  $F_0$  - общая активность на всех элементах прибора;  $K_{ij}$  – индивидуальное удержание частиц размера  $j$  на элементе  $i$ ;  $K_{+j}$  - просуммированное по всем элементам прибора индивидуальное удержание частиц размера  $j$ ;  $F_{+j}$  – суммарная активность частиц всех размеров на элементе  $i$ .

В **четвертой** главе описывается разработанная одноканальная диффузионная батарея каскадного типа с последовательным расположением улавливающих элементов и дифференциальным подходом к получению данных. Прибор представляет собой канал из алюминия, собранный из отдельных коротких каналов с резьбовыми соединениями, в которых фиксируются улавливающие элементы прибора, перемежаемые резиновыми

кольцами для обеспечения ламинарности потока. Схема прибора представлена на рисунке 2.

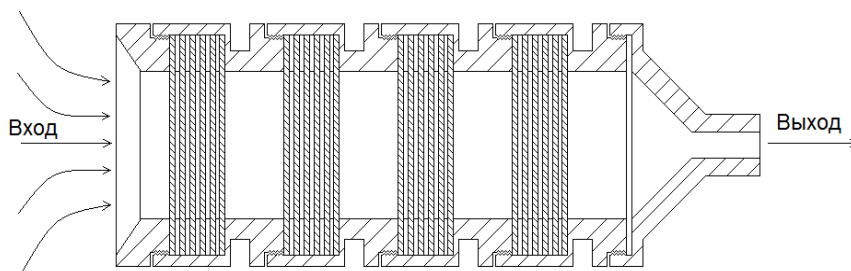


Рисунок 2. Схема разработанной диффузионной батареи.

В качестве улавливающих элементов используются тканые проволочные сетки с параметрами, представленными в таблице 1. После сеток устанавливается финишный фильтр. Было использовано несколько комплекций диффузионных батарей, отличающихся количеством улавливающих элементов, их параметрами и расходом воздуха при отборе пробы. Характеристики комплекций представлены в таблице 2.

Таблица 1. Характеристики используемых сеток

Обозначение сетки	Материал сетки	Плотность материала, г/см <sup>3</sup>	Толщина проволоки, мкм	Ширина раскрытия ячейки, мкм	Толщина сетки, мкм	Масса сетки, г	Доля твердого, отн. ед.	Перепад давления при потоке 1 см/с, мПа
(65/100/8,5)	Латунь	8,5	65	100	130	0,69	0,32	31,4
(65/100/7,8)	Сталь	7,8	65	100	130	0,63	0,32	31,4
(40/2000/8,9)	Копель	8,9	40	2000	78	0,026	0,02	0,52
(250/500/7,8)	Сталь	7,8	250	500	500	2,1	0,28	5,8
(30/40/7,8)	Сталь	7,8	30	40	60	0,31	0,34	76,0

Таблица 2. Используемые комплекции диффузионных батарей

Состав диффузионной батареи	Число элементов	Расход воздуха, л/мин	Диапазон d50%, нм
(65/100/8,5)	20	30	1,7-16,9
	5	30	1,7-4,9
(65/100/7,8)	5	30	1,7-4,9
(40/2000/8,9)	20	30	0,2-2,0
Комбинированная батарея (250/500/7,8) (65/100/8,5) (30/40/7,8)	5 5 10	22,5	0,9-23,5

Предложенная комплектация из сеток типа (40/2000/8,9) была разработана для определения дисперсности частиц с минимальным физически возможным размером порядка одного атома, она обладает высоким разрешением в начальной области спектра размеров частиц. Комбинированная диффузионная батарея была разработана для наиболее полного покрытия размерного диапазона, а улавливающие элементы подобраны таким образом, чтоб разрешение изменялось от очень высокого в области малых частиц к низкому в области крупных частиц.

Получены значения поправок, необходимых при расчете ЭРОА радона из результатов измерений альфа-излучения с улавливающих объектов радиометром. Теоретически и экспериментально исследовалась эффективность регистрации альфа-излучения с улавливающих элементов при работе с разными радиометрами, влияние материала сетки на оседание частиц, влияние расстояния между сетками на эффективность улавливания, а также возможные процессы отражения частиц от финишного фильтра и оседания частиц непосредственно на стенках канала диффузионной батареи. Конструкция батареи после оценки поправок подобрана таким образом, чтобы исключить влияние вышеизложенных процессов. Особое внимание уделено расчету равновесия продуктов распада радона на улавливающих элементах диффузионной батареи в зависимости от параметров элемента и его местоположения в приборе.

**В пятой главе** изложены результаты теоретического моделирования прохождения аэрозольных частиц через диффузионную батарею. Представлены результаты некоторых экспериментов, в частности, восстановление модельного распределения из трех мод (с АМТД 0,3; 1; 5 нм с долевым распределением активности 0,1; 0,3; 0,6, соответственно; среднеквадратичное отклонение каждой моды – 1,25), оседающего на диффузионной батарее из 20 сеток типа (40/2000/8,9) при скорости отбора 30

л/мин. Распределение с таким малым среднеквадратичным отклонением мод физически маловероятно и было выбрано, чтобы ужесточить условия модельного эксперимента. Результат восстановления представлен на рисунке 3. На основании модельных экспериментов выявлена высокая точность определения АМТД и весового вклада мод при работе с методом МО по сравнению с методом НК. Для проверки методов МО и НК также были восстановлены данные по прохождению аэрозолей через канальную диффузионную батарею, представленные в литературе (*Vargas et al., 2005*). Метод МО по сравнению с методом НК показал большую степень совпадения с результатами, которые авторы статьи считают наиболее адекватными. В главе также представлен модельный эксперимент по прохождению распределения, на оседание которого воздействует дополнительный процесс, не учитываемый при восстановлении, что приводит к перераспределению активности по элементам прибора. Был произведен анализ чувствительности методики к статистическим ошибкам в определении скорости отбора пробы, температуры среды при отборе пробы, случайным ошибкам в определении ЭРОА на элементах прибора. Смоделированные при воздействии данных, подвергнутых погрешностям, спектры сопоставлялись со спектром, полученным при точных данных. Во всех рассмотренных случаях относительная ошибка определения АМД не превысила 17%, относительная ошибка определения весового вклада моды в активность не превысила 5%.

В **шестой главе** представлены результаты определения размерного распределения аэрозолей продуктов распада радона по активности. Определение дисперсности аэрозолей производилось следующим образом: рассчитывалась матрица отклика прибора для определенной комплектации диффузионной батареи и условий эксперимента (скорость отбора, температура, давление и др.). Прибор помещался в экспериментальную



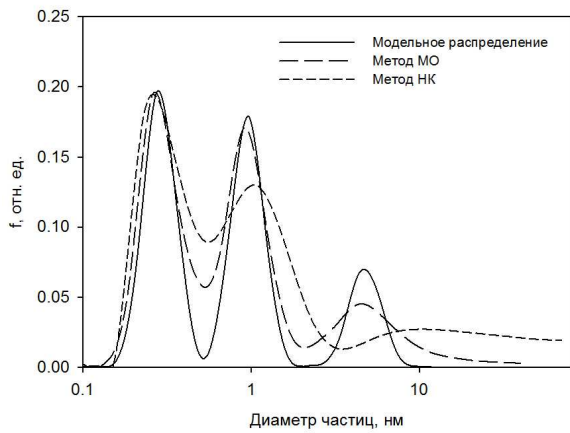


Рисунок 3. Восстановление модельного распределения при прохождении диффузионной батареи из 20 сеток типа (40/2000/8,9).

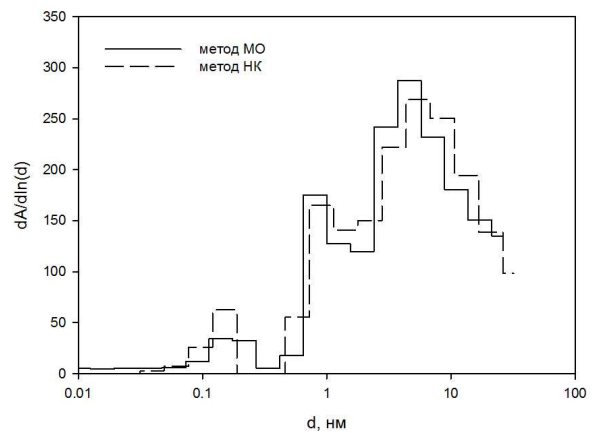


Рисунок 4. Распределение аэрозольных частиц по активности, полученное с помощью батареи из 20 сеток (40/2000/8,9) в лабораторном боксе.

атмосферу, осуществлялся отбор пробы с помощью воздухопрокачивающего устройства с расходомером. После отбора для каждого улавливающего элемента посредством радиометрирования и обсчета получались данные об ЭРОА радона, обусловленной осевшими на элементе частицами. Итоговый набор данных об ЭРОА на сетках диффузионной батареи обрабатывался с помощью методов МО и НК для восстановления размерного распределения аэрозольных частиц по активности. В отличие от модельных экспериментов, результаты восстановления реальных данных представлены в виде гистограмм, а не гладких кривых, что более правильно ввиду дискретности получаемых о распределении данных.

Эксперименты каждого вида, отличающиеся местом отбора пробы и комплектацией диффузионной батареи, воспроизводились несколько раз. Данные, получаемые в каждом из экспериментов, обрабатывались для определения дисперсности аэрозолей ДПР радона в данных условиях. Результаты экспериментов одного вида сводились для вычисления средних значений параметров среды и полученных размерных распределений. В качестве АМТД указана середина интервала восстановления, на котором данная мода имеет максимальную высоту. Эксперименты для определения дисперсности аэрозолей продуктов распада радона-222 проводились в радоновой лаборатории Физико-технологического института Уральского

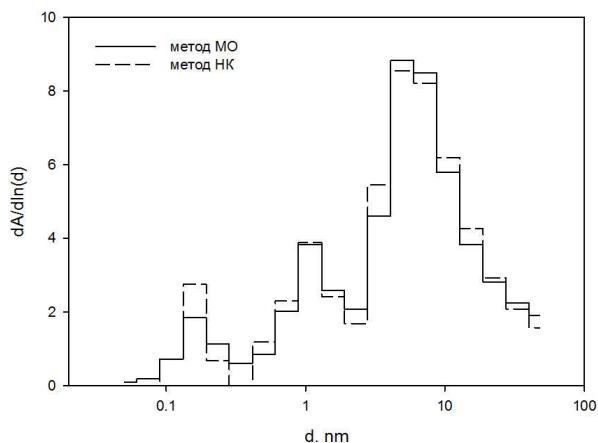


Рисунок 7. Распределение аэрозольных частиц по активности, полученное с помощью батареи из 20 сеток типа (40/2000/8,9) в реальных условиях.

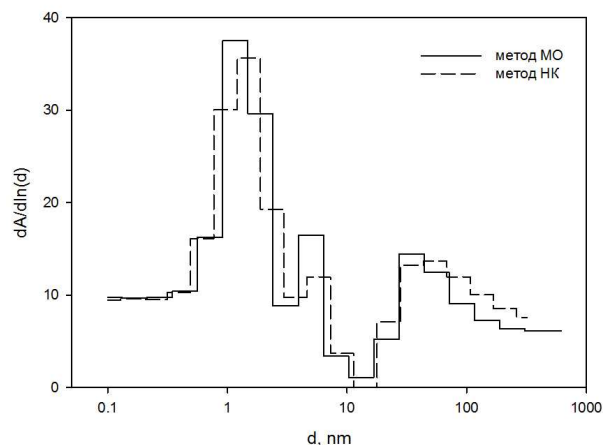


Рисунок 8. Распределение аэрозольных частиц по активности, полученное с помощью батареи из 20 сеток типа (65/100/8,5) в реальных условиях.

Федерального Университета в специализированном боксе объемом  $\sim 2 \text{ м}^3$ , где ЭРОА радона-222 варьирует от 2 до 17  $\text{кБк/м}^3$ . Эксперименты в этих условиях производились в осеннее и зимнее время, резких колебаний климатических условий не наблюдалось. Полевые условия исследовались на базе хранения монацитового концентрата предприятия «Уралмонацит», где наблюдаемая ЭРОА радона-220 в атмосфере колеблется от 100 до 1000  $\text{Бк/м}^3$ . Для выполнения экспериментов совершались экспедиционные выезды.

Средние для времени выполнения экспериментов условия: температура  $18,6 \pm 2,2 \text{ }^\circ\text{C}$ , давление  $740 \pm 4,5 \text{ мм.рт.ст.}$ , влажность  $75,3 \pm 6,7 \%$ .

В автореферате в виде рисунков представлены результаты, полученные как методом МО, так и методом НК. Численные данные представлены только для метода МО. На рисунках 4-6 представлены типичные спектры, полученные в лабораторных условиях с помощью разных комплектаций диффузионных батарей. В таблице 3 представлены общие результаты для экспериментов, проведенных в радоновом боксе. На рисунках 7-8 представлены типичные спектры, полученные в полевых условиях. В таблице 4 представлены общие результаты по экспериментам в полевых условиях.

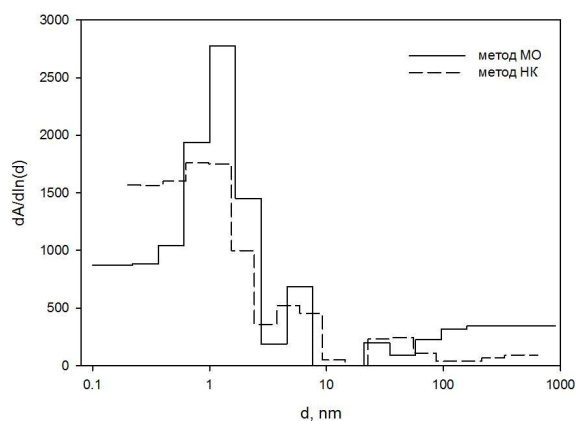


Рисунок 5. Распределение аэрозольных частиц по активности, полученное с помощью батареи из 20 сеток типа (65/100/8,5) в лабораторном боксе.

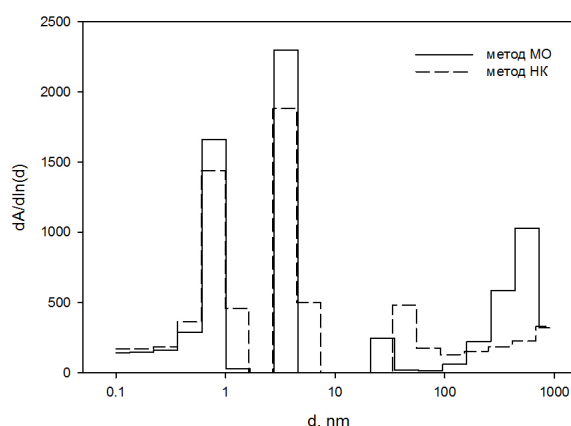


Рисунок 6. Распределение аэрозольных частиц по активности, полученное с помощью комбинированной батареи (5 сеток (250/500/7,8); 5 сеток (65/100/8,5); 10 сеток (30/40/7,8)) в лабораторном боксе.

Полученные результаты для разных условий и комплектаций диффузионных батарей сопоставлялись между собой. Отмечено, что распределение ЭРОА по модам отличается в зависимости от комплектации, но АМГД в разных экспериментах схожи как для разных комплектаций, так и для продуктов распада разных изотопов радона. В общем случае для всех распределений можно выделить моды с АМГД около 0,3; 1,5; 7; 50 нм и крупную моду с АМГД свыше 600 нм.

Таблица 3. Результаты, полученные в лабораторных условиях

Параметр	Средняя суммарная активность на сетках, Бк/м <sup>3</sup>	Средняя суммарная активность на диффузионной батарее, Бк/м <sup>3</sup>	Средняя доля активности на сетках, отн. ед.
20 сеток типа (40/2000/8,9)	830±136	5300±1590	0,2±0,03
20 сеток типа (65/100/8,5)	5500±1750	14100±6200	0,4±0,1
Комбинированная батарея	5400±2300	12300±2500	0,5±0,3
Усредненные параметры восстановленных распределений			
	АМГД, нм	Доля в активности на сетках, отн. ед.	Повторяемость моды в экспериментах, %
Батарея из 20 сеток типа (40/2000/8,9)			
Мода 1	0,26±0,06	0,05±0,01	100
Мода 2	1,2±0,2	0,21±0,03	100
Мода 3	5,5±0,3	0,74±0,02	100

	АМТД, нм	Доля в активности на сетках, отн. ед.	Повторяемость моды в экспериментах, %
Батарея из 20 сеток типа (65/100/8,5)			
Мода 1	< 0,4	0,21±0,03	100
Мода 2	1,8±0,2	0,53±0,07	100
Мода 3	8,4±1,2	0,11±0,04	100
Мода 4	40,0±18,0	0,04±0,02	50
Мода 5	> 600	0,15±0,05	100
Комбинированная батарея			
Мода 1	< 0,4	0,04±0,02	100
Мода 2	1,0±0	0,31±0,06	100
Мода 3	4,5±0	0,11±0,04	100
Мода 4	37,0±4,3	0,03±0,02	100
Мода 5	> 600	0,3±0,1	100

Таблица 4. Результаты, полученные в полевых условиях на предприятии «Уралмонацит»

Параметр	Средняя суммарная активность на сетках, Бк/м <sup>3</sup>	Средняя суммарная активность на диффузионной батарее, Бк/м <sup>3</sup>	Средняя доля активности на сетках, отн. ед.
20 сеток типа (40/2000/8,9)	21,5±9,0	500±80	0,04±0,02
20 сеток типа (65/100/8,5)	100±15	522±113	0,20±0,06
Усредненные параметры восстановленных распределений			
	АМТД, нм	Доля в активности на сетках, отн. ед.	Повторяемость моды в экспериментах, %
Батарея из 20 сеток типа (40/2000/8,9)			
Мода 1	0,3±0,06	0,07±0,03	100
Мода 2	1,6±0,4	0,19±0,02	100
Мода 3	7,7±0,3	0,74±0,02	100
Батарея из 20 сеток типа (65/100/8,5)			
Мода 1	< 0,4	0,13±0,04	100
Мода 2	1,8±0,4	0,43±0,07	100
Мода 3	6,5±0,2	0,11±0,02	100
Мода 4	60,0±34,0	0,24±0,16	100
Мода 5	> 600	0,2±0,02	40

Для батарей из сеток типа (40/2000/8,9) вклад любой моды в общую активность не превышает 5%, а активность преимущественно относится к моде 3 с АМТД около 7 нм. Такая картина может быть связана с тем, что разрешение батареи настолько высоко (диаметры 50% отсекаания от 0,2 до 1,95 нм), что большая часть частиц с очень малыми размерами проходит

через все сетки прибора, задерживаясь на финишном фильтре. Результаты экспериментов с комплектацией батареи из двадцати сеток типа (40/2000/8,9) подтвердили гипотезу о возможности улавливания свежесформированных частиц продуктов распада радона, обладающих наименьшим физически возможным размером порядка одного атома. И для радона-222, и для радона-220 были выделены моды с АМТД 0,3 нм, четко отделяемые от кластерной моды с АМТД 1,5 нм. Соответственное соотношение между модами составило 0,24 для радона-222 и 0,4 для радона-220. Вклад моды с АМТД 0,3 нм в общую активность очень мал (не более 1% для обоих изотопов).

При восстановлении данных с батареи из сеток (65/100/8,5) после отбора в боксе обнаружено, что активность на сетках преимущественно относится к первым двум модам распределения с АМТД около 0,3 и 1,8 нм. При этом они вносят существенный вклад и в общую активность в атмосфере, совокупно около 30%. В естественных условиях активность аэрозолей, улавливаемых на сетках, распределена более равномерно по модам, а оседание активности на сетках вполовину меньше, чем в боксе (20% против 40%). Мода с АМТД 40 нм в боксе выражена очень слабо, тогда как в атмосфере «Уралмонацита» она наблюдается всегда и несет до 40% активности, улавливаемой на сетках. Это может быть связано с большим количеством частиц, образованных посредством конденсации, а также с более долгим периодом полураспада Рb-212, в связи с чем этот продукт распада радона-220 успевает принять участие в большем числе стадий формирования аэрозольных частиц.

Комбинированная диффузионная батарея позволила выявить все те же моды, что и батарея из 20 сеток типа (65/100/8,5), однако доленое распределение активности по модам несколько отличается. Существенно ниже доля частиц с АМТД менее 0,4 нм (4% против 20%), вклад частиц следующей моды с АМТД около 1 нм также ниже (30% против 50-60%).

Частицы с очень крупным размером более 600 нм уловлены в большей степени, доля активности на них около 20-30 % против 12-15% у батареи из сеток типа (65/100/8,5). К частицам таких размеров понятие АМТД применять затруднительно, так как инерционные их свойства выражены более сильно, чем диффузионные. Ранее мы исследовали крупнодисперсную фракцию аэрозолей как в боксе, так и в естественных условиях предприятия «Уралмонацит» с помощью каскадного импактора, в котором частицы оседают под действием инерции в силу своих аэродинамических свойств (Саломатова и др., 2009). При использовании графического метода интерпретации данных были получены следующие результаты: в боксе наблюдалась фракция с медианным диаметром  $300 \pm 20$  нм, в полевых условиях монацитовых складов –  $340 \pm 100$  нм. Эти результаты не противоречат полученным с помощью диффузионной батареи, а так же подтверждают, что распределение аэрозолей продуктов распада радона-220 и радона-222 совпадает.

Полученные значения вписываются в общие представления о распределении радиоактивных аэрозольных частиц по активности. Что касается аэрозолей продуктов распада радона, в литературе докладывается о наличии различных мод распределения ДПР радона-222 в области единиц, десятков и сотен нанометров, особо отмечается наличие нескольких мод в области 1 нм и менее. Для ДПР радона-220 также ранее докладывалось о модах с АМТД в области единиц, десятков и сотен нанометров, а о наличии частиц с диаметром менее 2 нм свидетельствовал подъем спектра в данной области. Все это хорошо согласуется с полученными данными.

## **Выводы.**

1. Дифференциальный подход к получению данных имеет преимущества перед интегральным подходом. Дифференциальный подход позволяет повысить точность получаемых данных, существенно снизить число

улавливающих элементов, составляющих прибор, тем самым обеспечив компактность прибора и возможность использования единственного пробоотборного устройства.

2. Представленная диффузионная батарея позволяет получить размерное распределение аэрозольных частиц по активности в диапазоне от десятых долей до сотен нанометров. В ходе экспериментов были получены распределения аэрозольных частиц ДПР радона по активности, на которых были дифференцированы моды с АМТД 0,3; 1,5; 8; 50 нм и крупная мода с АМТД более 600 нм. Распределения для ДПР радона-220 и радона-222 совпадают.

3. Специальная комплектация диффузионной батареи из 20 сеток типа (40/2000/8,9), обладающая высоким разрешением в области предельно малых аэрозольных частиц (диаметры 50% отсекация каскадов от 0,2 до 2,0 нм), позволила для радона-222 впервые выделить моду распределения аэрозольных частиц по активности с АМТД 0,3 нм, для радона-220 впервые выделить моды с АМТД 0,3 и 1,5 нм.

4. Метод максимизации ожидания позволяет оптимальным образом восстановить косвенные данные, получаемые с помощью диффузионной батареи каскадного типа с последовательным расположением улавливающих элементов. Это было доказано результатами модельных экспериментов, а также косвенно подтверждено данными, полученными в ходе реальных экспериментов. Преимуществом метода является учет того, что часть частиц, для которых фронт функции проницаемости полностью не входит в размерный диапазон восстановления, улавливается лишь частично. В процессе обработки данных доли частиц таких размеров восстанавливаются до своего полного содержания в исходной атмосфере.

## **Публикации в журналах, рекомендованных ВАК РФ**

1. Саломатова М.А., Екидин А.А., Жуковский М.В. Дисперсность дочерних продуктов распада радона в воздухе // АНРИ (Аппаратура и новости радиационных измерений). – 2009. – №3. – С. 42-49.
2. Рогозина, М.А., Жуковский, М.В., Екидин, А.А. Интерпретация данных с диффузионной батареи экранного типа с последовательным расположением улавливающих элементов // Приборы и техника эксперимента. 6, 74-76 (2013). (Rogozina, M. A., Zhukovskii, M. V. and Ekinin, A. A. Interpretation of data from the screen-type diffusion battery with the sequential arrangement of trapping elements // Instrum. Exp. Tekh. 6, 683–685 (2013)).
3. Zhukovsky, M. I., Rogozina, M. and Suponkina, A. Size distribution of radon decay products in the range 0.1–10 nm. Radiat. Prot. Dosim. (2014). doi:10.1093/rpd/ncu084.
4. Rogozina, M., Zhukovsky, M., Ekinin, A., Vasyanovich, M. Thoron progeny size distribution in monazite storage facility // Radiation Protection Dosimetry. 2014. No. 162 (1-2): 10-3. doi:10.1093/rpd/ncu208.

## **Материалы в сборниках трудов конференций**

1. Bastrikov, V., Rogozina, M., Yarmoshenko, I., Zhukovsky, M. Multi-screen diffusion battery for radon progeny dispersion analysis // Proc. Third European Congress of the International Radiation Protection Association. Helsinki, 2010. P. 12-22.
2. Zhukovsky, M., Ekinin, A., Yarmoshenko, I., Rogozina, M. Ecological and radiological consequences of half-century operation of monazite storage facility // Naturally Occurring Radioactive Materials (NORM VI). IAEA Proceedings Series. 2011. P. 91 – 101.
3. Zhukovsky, M. I., Rogozina, M., and Suponkina, A. Size distribution of radon decay products in the range 0.1–10 nm // 7<sup>th</sup> International Conference on Protection Against Radon at Home and at Work. Book of abstracts. 2013. P. 41.
4. Rogozina, M., Zhukovsky, M., Ekinin, A., Vasyanovich, M. Thoron progeny size distribution in monazite storage facility // Second East European Radon Symposium (SEERAS). Book of abstracts. 2014. P. 36.