На правах рукописи

# КАРЕВ Андрей Евгеньевич

# АППАРАТУРНО-МЕТОДИЧЕСКИЙ КОМПЛЕКС ДЛЯ ОЦЕНКИ ИНГАЛЯЦИОННОГО ПОСТУПЛЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ГАЗО-АЭРОЗОЛЬНЫХ СМЕСЕЙ

05.26.02 - Безопасность в чрезвычайных ситуациях (ядерный топливно-энергетический комплекс)

АВТОРЕФЕРАТ диссертации на соискание ученой степени кандидата технических наук

Москва - 2018

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении «Государственный научный центр Российской Федерации - Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна»

Научный руководитель: доктор технических наук Шинкарев Сергей Михайлович.

Официальные оппоненты:

Огородников Борис Иванович, доктор химических наук, профессор, главный научный сотрудник лаборатории аэрозолей АО «НИФХИ им. Л.Я. Карпова», г. Москва; Сухоручкин Андрей Константинович, кандидат физико-математических наук, начальник лаборатории НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва.

Ведущая организация: АО «Специализированный научно-исследовательский институт приборостроения» ГК «Росатом» (г. Москва).

Защита состоится "<u>20</u>"<u>июня</u> 2018 г. в 11-00\_час. на заседании диссертационного совета Д 462.001.02, созданного на базе ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России по адресу: 123182 Москва, ул. Живописная, д.46.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России и на сайте ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России по адресу: http://fmbafmbc.ru/help-center/Karev%20disser37.pdf

Автореферат разослан "\_\_\_\_" \_\_\_\_ 2018 г.

Ученый секретарь диссертационного совета, кандидат технических наук

p

Молоканов Андрей Алексеевич

# СОКРАЩЕНИЯ

CFD – computational fluid dynamics (вычислительная гидродинамика)

АМАД – медианный по активности аэродинамический диаметр

ГФУ – гексафторид урана

ДОА – допустимая объемная активность

ЗРИ – завод разделения изотопов

ЛНР – логнормальное распределение

ОЭД – ожидаемая эффективная доза внутреннего облучения

ПГП – предел годового поступления

СЗ – сублиматный завод

ФРТЧ – фантом респираторного тракта человека

ХМЗ – химико-металлургический завод

ЯТЦ – ядерно-топливный цикл

#### ОБОЗНАЧЕНИЯ

D<sub>50</sub> – эффективный каскадный аэродинамический диаметр разделения

H<sub>T</sub> – ожидаемая эквивалентная доза внутреннего облучения

H<sub>TH</sub> – ожидаемая эквивалентная доза облучения легких (торакального отдела органов дыхания как целого)

H<sub>ET</sub> – ожидаемая эквивалентная доза облучения экстраторакального отдела органов дыхания как целого

 $h_{T}(\tau)_{U}^{inh}$  – ожидаемая эквивалентная доза облучения ткани T органа дыхания при ингаляционном поступлении 1 Бк радионуклида U за время  $\tau$ , прошедшее после поступления радиоактивных веществ в организм, Зв/Бк

А<sub>т</sub> – взвешивающий коэффициент для тканей Т органов дыхания

Обозначения органов дыхания в модели Публикации 66 МКРЗ

Экстраторакальный отдел:

ЕТ<sub>1</sub> - ткани передней части носа

ET<sub>2</sub> - задняя часть носового хода, носовая часть глотки, ротовая часть глотки и гортань

LN<sub>ET</sub> - лимфатические узлы экстраторакального отдела

Торакальный отдел:

BB<sub>bas</sub> - базальные клетки стенок бронхов

BB<sub>sec</sub> - секреторные клетки стенок бронхов

bb - бронхиолы

AI – ткани альвеолярной области

LN<sub>TH</sub> - лимфатические узлы торакального отдела

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

#### <u>Актуальность</u>

Получение информации о характеристиках ингаляционного поступления для корректного расчета дозы внутреннего облучения является важной составляющей в комплексе мер обеспечения радиационной безопасности персонала радиационно-опасных объектов при штатных условиях работы, а также для оценки радиационного воздействия на персонал и население в случае радиационных аварий. На отдельных производствах предприятий ЯТЦ внутреннее облучение лиц из персонала вследствие ингаляционного поступления радионуклидов может играть ведущую роль по сравнению с внешним облучением. Внутреннее облучение, обусловленное ингаляционным поступлением, может выходить на первый план и в случае радиационной аварии, как показал опыт изучения

последствий аварии на АЭС «Фукусима-1». Установлено, что наиболее высокие дозы облучения лиц, участвовавших в ликвидации последствий данной аварии, были получены за счет ингаляционного поступления радиоактивных изотопов йода.

Как правило, оценка дозы внутреннего облучения при ингаляционном поступлении радионуклидов сопровождается существенными неопределенностями и вызывает большие трудности, чем оценка дозы внешнего облучения. В рамках действующей системы радиационной защиты доза внутреннего облучения определяется такими характеристиками вдыхаемых аэрозолей, как радионуклидный состав, дисперсность, тип соединения при ингаляции, а в случае радиоактивных газо-аэрозольных смесей – еще и фазовым составом (соотношение объемных активностей газ/аэрозоль). К радиоактивным газо-аэрозольным смесям относятся летучие соединения изотопов йода, рутения, урана и др. Для оценки ОЭД при ингаляционном поступлении данных смесей необходимо раздельное определение объемной активности газовой и аэрозольной фракций.

До сих пор при анализе последствий радиационных аварий и ретроспективной оценке доз внутреннего облучения персонала и населения исследователи вынуждены использовать предположения о дисперсном и фазовом составе газо-аэрозольных смесей, поскольку отсутствуют мобильные устройства, позволяющие оперативно получать экспериментальные данные о характеристиках ингаляционного поступления. Велика востребованность данных устройств и для контроля ингаляционного поступления на предприятиях ЯТЦ в условиях их штатной работы. Изложенное выше определяет актуальность решения важной научной задачи: повышение точности оценки дозы внутреннего облучения лиц из персонала и населения при ингаляционном поступлении радиоактивных газо-аэрозольных смесей в различных ситуациях облучения (включая аварийные) путем экспериментального определения дисперсности аэрозольных частиц и объемной активности газовой и аэрозольной составляющих с помощью специально разработанных аппаратурнометодических комплексов.

<u>ЦЕЛЬЮ ДИССЕРТАЦИОННОЙ РАБОТЫ</u> является разработка аппаратурнометодического комплекса для оценки ингаляционного поступления радиоактивных газоаэрозольных смесей на основе экспериментального определения объемной активности:

- аэрозольной фракции с учетом распределения активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта и
- газовой фракции путем ее преобразования в аэрозольную фракцию.

В соответствии со сформулированной целью диссертации основными

## ЗАДАЧАМИ РАБОТЫ являются:

- 1. Разработка метода оценки активности аэрозольных частиц, осажденных в отделах дыхательного тракта человека, на основе экспериментальных данных, полученных с помощью импактора.
- 2. Разработка импактора для реализации метода оценки активности аэрозольных частиц, осажденных в отделах дыхательного тракта человека.
- 3. Разработка способа оценки ингаляционного поступления на основе анализа фазового и дисперсного состава радиоактивных газо-аэрозольных смесей.
- 4. Разработка устройства, состоящего из размещенных последовательно импактора и химического реактора, для оценки ингаляционного поступления радиоактивных газоаэрозольных смесей.

# <u>Научная новизна</u>

1. Разработан метод оценки активности аэрозольных частиц, осажденных в отделах дыхательного тракта на основе экспериментальных данных, полученных с помощью импактора. Предложенный метод позволяет оценить активность аэрозольных частиц, осажденных в различных отделах дыхательного тракта согласно дозиметрической

модели Публикации 66 МКРЗ, независимо от типа распределения активности аэрозолей по размерам частиц.

- 2. Разработана конструкция импактора-фантома респираторного тракта человека для реализации метода оценки активности аэрозольных частиц, осажденных в отделах дыхательного тракта. В результате численного моделирования и экспериментальных исследований получены зависимости эффективности осаждения от аэродинамического диаметра аэрозольных частиц на каскадах данного устройства. Новизна подтверждена патентом (RU 2509375 от 10.03.14).
- 3. Разработано устройство, состоящее из размещенных последовательно импактора и химического реактора, позволяющее повысить точность оценки дозы внутреннего облучения при ингаляционном поступлении радиоактивных газо-аэрозольных смесей за счет получения экспериментальных данных о дисперсном составе, о распределении активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта, о фазовом составе (соотношение объемных активностей газ/аэрозоль) газо-аэрозольной смеси. Новизна подтверждена патентом (RU 2480730 от 27.04.13).

## Практическая значимость диссертационной работы

1. В результате применения ФРТЧ на технологической цепочке Н (производство <sup>241</sup>Am-Ве нейтронных источников) ΦГУП «ПО «Маяк» установлены следующие характеристики распределения активности аэрозольных частиц по аэродинамическим диаметрам в операторской:

Фракция 1: АМАД = 0,8 мкм,  $\beta g$  = 3,0, вклад в суммарную активность - 43%

Фракция 2: АМАД = 9,2 мкм,  $\beta g = 1,7$ , вклад в суммарную активность - 57%

Полученные характеристики могут быть использованы а) для расчета ожидаемых эквивалентных доз отделов респираторного тракта при штатном режиме работы б) для расчета дозовых коэффициентов для перехода от объемной активности радиоактивных аэрозолей к ожидаемой эффективной дозе внутреннего облучения.

- 2. Рассчитанные значения ожидаемых эквивалентных доз облучения в год экстраторакального Н<sub>ЕТ</sub> и торакального Н<sub>TH</sub> отделов респираторного тракта при среднегодовой объемной активности 9,3·10<sup>-4</sup> Бк/м<sup>3</sup> и установленных характеристиках распределения активности по аэродинамическим диаметрам аэрозольных частиц на ФГУП «ПО «Маяк» составили 21 мкЗв и 1,7 мкЗв соответственно.
- 3. Дозовые коэффициенты, установленные в результате применения ФРТЧ на ФГУП «ПО «Маяк» (для операторской: 1,8·10<sup>-5</sup> Зв/Бк; для ремонтной зоны: 1,7·10<sup>-5</sup> Зв/Бк), позволяют устранить возможное систематическое завышение ОЭД для лиц из персонала в 2 раза. Результаты работ подтверждены актом о внедрении результатов диссертационной работы на ФГУП «ПО «Маяк» (№ 193-5-5.5/3297 от 9.12.2015)
- 4. Установлено, что распределение активности по аэродинамическим диаметрам аэрозольных частиц в операторской на участке металлургии XM3 AO «СХК» носит бимодальный характер со значительным вкладом грубодисперсных аэрозолей в суммарную активность. Значение АМАД первой фракции (по данным, полученным с помощью ФРТЧ) составило 8,6 мкм (β<sub>g</sub> = 3,7, вклад в суммарную активность 22%), среднее значение АМАД грубодисперсной фракции: 36 мкм (β<sub>g</sub> = 1,4, вклад в суммарную активность 78%). Рассчитанные значения ожидаемых эквивалентных доз облучения в год экстраторакального H<sub>ET</sub> и торакального H<sub>TH</sub> отделов респираторного тракта при среднегодовой объемной активности 0,05 Бк/м<sup>3</sup> и установленном дисперсном составе радиоактивных аэрозолей составили 510 мкЗв и 4,8 мкЗв соответственно.
- 5. Значение дозового коэффициента для операторской и ремонтной зоны (3,0·10<sup>-5</sup> Зв/Бк), установленное в результате применения ФРТЧ на участке металлургии XM3 AO «СХК» позволяет устранить систематическое завышение оценки ОЭД для лиц из

персонала в 1,6 раз. Результаты работ подтверждены актом о внедрении результатов диссертационной работы на АО "СХК" (№ 106-08/470 от 3.04.2015)

- 6. Доля газообразного ГФУ, определенная с помощью разработанного устройства, состоящего из размещенных последовательно импактора и химического реактора, на СЗ и ЗРИ АО «СХК» варьируется от 0,52% до 5,2%. Рассчитанный вклад газообразной фракции ГФУ в годовое значение ОЭД оказался незначителен и составляет в среднем 1,1% для СЗ и 0,03% для ЗРИ.
- 7. Разработана методика измерений «Определение характеристик распределения радиоактивного аэрозоля по размерам с помощью импактора-фантома респираторного тракта человека», свидетельство об аттестации № 7-4/25.01.00087-2015 от 7.10.2015, зарегистрирована в Федеральном информационном фонде по обеспечению единства измерений под номером ФР.1.31.2016.23130.
- 8. Разработанный аппаратурно-методический комплекс может применяться для контроля объемной активности радиоактивных газо-аэрозольных смесей на предприятиях ЯТЦ при штатном режиме работы, а также для верификации параметров моделей по оценке доз персонала и населения при ингаляционном поступлении газо-аэрозольных смесей в результате радиационных аварий.

#### На защиту выносятся:

- 1. Метод оценки распределения активности аэрозольных частиц, осажденных в отделах дыхательного тракта согласно дозиметрической модели Публикации 66 МКРЗ, на основе экспериментальных данных, полученных с помощью импактора, независимо от типа распределения активности аэрозолей по размерам частиц.
- 2. Конструкция импактора для реализации метода оценки распределения активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта.
- 3. Устройство, состоящее из размещенных последовательно импактора и химического реактора, позволяющее повысить точность оценки дозы внутреннего облучения при ингаляционном поступлении радиоактивных газо-аэрозольных смесей за счет получения экспериментальных данных о дисперсном составе, о распределении активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта, о фазовом составе газо-аэрозольной смеси.

# Объем и структура работы

Диссертация состоит из введения, пяти глав, выводов и списка литературы. Работа изложена на 139 страницах машинописного текста и содержит 65 рисунков и 47 таблиц. Список литературы включает 87 библиографических ссылок, в том числе 51 - в отечественных изданиях и 36 – в зарубежных.

#### Публикации

По теме диссертации опубликовано 17 печатных работ, в том числе 7 опубликованы в журналах из списка ведущих рецензируемых научных журналов и изданий, утвержденных ВАК РФ, 2 патента, тезисы 8 докладов на российских и международных конференциях.

# Апробация работы

Основные результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на следующих научных конференциях и симпозиумах:

Научная сессия НИЯУ МИФИ (г. Москва, 2012, 2013), IV Научно-практическая конференция «Актуальные вопросы обеспечения радиационной безопасности на современном этапе» (г. Санкт-Петербург, 2012), восьмая Всероссийская конференция «Проблемы обеспечения взрывобезопасности и противодействия терроризму» (г. Санкт-Петербург, 2013), конференция «Девятые Петряновские чтения» (НИФХИ им. Карпова, г. Москва, 2013), Международная конференция и выставка технологий фильтрации и сепарации FILTECH (г. Висбаден, Германия, 2013; г. Кельн, Германия, 2015), 60-я конференция Общества физики здоровья (Health Physics Society), г. Индианаполис, Индиана, США (2015), Европейская Аэрозольная Конференция EAC (г. Милан, Италия, 2015; г. Цюрих Швейцария, 2017), 10-я Российская научная конференция «Радиационная защита и радиационная безопасность в ядерных технологиях» (г. Обнинск, 2015).

**Личное участие автора** в получении результатов исследований, изложенных в диссертации, выразилось в следующем:

1. Разработан метод оценки распределения активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта на основе экспериментальных данных, полученных с помощью импактора.

2. Рассчитаны параметры каскадов ФРТЧ, создана трехмерная модель внутреннего объема импактора, проведено численное моделирование осаждения аэрозольных частиц на каскадах с помощью программного комплекса STAR-CCM+, получены численные и экспериментальные зависимости эффективности осаждения от аэродинамического диаметра частиц.

3. Проведена апробация ФРТЧ в производственных помещениях предприятий ФГУП «ПО «Маяк» (завод 45, цепочка H, 2013), XM3 AO «СХК» (участок металлургии, 2014), C3 AO «СХК» (производство сырьевого ГФУ, 2017).

4. Рассчитаны параметры, проведено численное моделирование и экспериментальное исследование конструкции устройства, состоящего из размещенных последовательно импактора и химического реактора, для реализации способа оценки ингаляционного поступления радиоактивных газо-аэрозольных смесей на основе раздельного анализа фазового и дисперсного состава. В 2017 году проведена апробация данного устройства на C3 и ЗРИ АО «СХК».

Достоверность научных положений и выводов обеспечена использованием современных экспериментальных методов исследований, а также обеспечена подтверждением ряда полученных результатов данными, известными из литературы.

#### СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Работа состоит из пяти глав, заключения и списка литературы.

**Во введении** обоснована актуальность разработки мобильных устройств, позволяющих оперативно получать экспериментальные данные об основных характеристиках ингаляционного поступления, сформулированы цель работы, изложены основные положения, выносимые на защиту.

В главе 1 из обзора методов и устройств, разработанных для оценки дисперсного состава аэрозолей можно сделать вывод, что наибольшее распространение в России и за рубежом получили импакторы - устройства, на каскадах которых происходит инерционное разделение частиц по размерам. Обзор характеристик существующих устройств, моделирующих осаждение аэрозолей в респираторном тракте, показал, что ввиду технической сложности, применение данных устройств влечет за собой трудоемкий процесс обработки экспериментальных данных. Обзор методов улавливания радиоактивного рутения показал, что существующие методы предназначены для их использования в стационарных вентиляционных очистительных комплексах, при этом они не позволяют количественно оценивать соотношение аэрозольной и газовой составляющих радиоактивного рутения в воздухе. По результатам анализа литературы обоснована актуальность темы диссертационной работы, сформулированы цель и задачи исследования.

В главе 2 проводилась разработка метода оценки распределения активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта на основе экспериментальных данных, полученных с помощью импактора. Необходимость в данном методе возникает, когда дисперсный состав аэрозолей не подчиняется ЛНР, при этом стоит задача по оценке распределения активности (и ожидаемых эквивалентных доз) по различным отделам дыхательного тракта.

Известно, что каскадный импактор Андерсена активно используется в аэрозольной терапии при исследовании дисперсного состава лечебных аэрозолей, генерируемых ингаляторами различных моделей. Из сопоставления заявленных разработчиком

характеристик импактора и модели респираторного тракта Публикации 66 МКРЗ следует, что:

- каскады 1 и 2 импактора Андерсена по характеристикам осаждения должны соответствовать экстраторакальному отделу – областям ЕТ1 и ЕТ2;

- каскады 3, 4 трахеобронхиальной области ВВ;
- каскад 5 бронхиолярной области bb;
- каскады 6, 7 альвеолярной области AI.

Автором были рассчитаны зависимости доли осажденных аэрозолей на каскадах импактора Андерсена от АМАД при предположении, что кривые эффективности осаждения имеют идеальный вид (т.е. все частицы крупнее D<sub>50</sub> осаждаются со 100%-й эффективностью). Сравнение зависимостей доли осажденных аэрозолей от АМАД для каскадов импактора Андерсена и областей респираторного тракта Публикации 66 МКРЗ представлены на рис.1 а-д.



Рис.1 Сравнение зависимостей доли осажденных аэрозолей от АМАД: а) область ЕТ<sub>1</sub> и каскад 1; б) обл.ЕТ<sub>2</sub> и каскад 2; в) обл.ВВ и каскад 3; г) обл.bb и каскад 5; д) обл. АІ и каскад 7 импактора Андерсена.

Из графиков на рис.1а-д следует, что импактор Андерсена не может удовлетворительно служить в качестве модели респираторного тракта Публикации 66 МКРЗ (отклонение доли осажденных аэрозолей варьируется от 46% (область ET1) до 1250% (область bb)). Для корректной оценки фракционного осаждения радиоактивных аэрозолей по отделам дыхательного тракта необходим метод обработки экспериментальных данных, полученных с помощью импактора.

В дозиметрической модели Публикации 66 МКРЗ отделы дыхательной системы рассматриваются как последовательность фильтров, захватывающих взвешенные частицы при вдохе и выдохе. Эффективность осаждения i-го фильтра, η<sub>i</sub>, определяется как доля аэрозольных частиц, которые отложились на фильтре, по отношению к общему числу частиц, поступивших на фильтр, и рассчитывается по эмпирической формуле Рудольфа:

$$\eta = 1 - \exp(-aR^p) , \qquad (1)$$

где а, R и p – параметры, значения которых приведены в Публикации 66 для диаметров обоих типов (аэродинамического и термодинамического) для каждого отдела респираторного тракта, как для входящего, так и для выходящего токов воздуха.

Доля осажденных частиц на каждом фильтре определяется формулой:

$$DE_{i} = \eta_{i} \cdot \phi_{i} \cdot \prod_{k=0}^{i-1} \left( 1 - \eta_{k} \right)$$
<sup>(2)</sup>

где:  $DE_i$  – доля осажденных монодисперсных аэрозолей;  $\eta_i$  - эффективность осаждения i-го фильтра;  $\phi_i$  – объемная фракция, характеризующая долю воздуха, доходящего до данного отдела дыхательных путей.

В случае полидисперсных аэрозолей доля активности осажденных частиц в дыхательных путях согласно модели Публикации 66 МКРЗ вычисляется по формуле:

$$DE_{A}\left(AMAD,\beta_{g}\right) = \int_{0}^{\infty} DE(d_{as})p_{A}(d_{as})\delta d_{as}$$
(3)

где:  $DE(d_{ae})$  – доля осажденных монодисперсных аэрозолей с аэродинамическим диаметром  $d_{ae}$ ;  $p_A(d_{ae})$  – доля активности аэрозольных частиц, приходящаяся на размерный интервал  $\delta d_{ae}$  логнормального распределения с данными АМАД и  $\beta_a$ .

Для определения параметра  $p_A(d_{ae})\delta d_{ae}$  в формуле (3) предлагается разбить исходное распределение активности по размерам частиц на доли активности, приходящиеся на определенные размерные интервалы, с помощью импактора, характеристики которого представлены в таблице 1.

		·····			- F		
Номер каскада	0	1	2	3	4	5	6
D <sub>50</sub> , мкм	23	9	5,8	4,7	3,3	1,1	0,43
Осаждаемая	> 23	23 - 9	9 - 5,8	5,8-4,7	4,7 – 3,3	3,3 – 1,1	< 0,43
фракция, мкм							

Табл. 1 Характеристики каскадов импактора ФРТЧ

Дальнейшая задача состояла в расчете значений долей  $DE(d_{as})$  монодисперсных аэрозолей, осевших в отделах дыхательных путей, причем значения  $d_{as}$  ограничены диапазоном из табл.1. Исходя из этого, для практического применения формулы (3) представим её в виде (4), заменяя интеграл на суммирование по диапазонам частиц со средней долей осаждения:

$$DE_{A} = \sum \left[ \frac{DE(d_{ae_{i}}) + DE(d_{ae_{i+1}})}{2} \right] \cdot \frac{A_{i}}{\Sigma A}$$
(4)

где:  $DE(d_{ae_i})$  – доли осаждения монодисперсных аэрозолей для различных отделов дыхательных путей со значениями  $d_{ae}$ , соответствующими границам осаждаемых фракций на каскадах (табл. 1);  $A_i$  – активность радионуклида на i-м каскаде, Бк;  $\Sigma A$  - суммарная активность радионуклида на всех каскадах импактора, Бк.

На рис.2а-д представлены результаты сравнения зависимостей доли осажденных аэрозолей от АМАД (во всех случаях  $\beta_g = 2,5$ ), полученных с помощью данного метода со значениями из Публикации 66 МКРЗ. Наибольшие значения относительной погрешности наблюдаются для значения АМАД 0,1 мкм – от 27% (отдел ВВ) до 39% (отдел bb), что, по всей видимости, связано с малым количеством каскадов, улавливающих субмикронную фракцию аэрозолей, в конструкции устройства.





Был проведен расчет долей осаждения для двух распределений, представленных на рис.3 а-б. Расчет посредством предложенного метода выполнялся для фактических распределений (гистограммы, восстановленные по результатам измерений активности на каскадах импактора). Результаты расчета (предложенным методом) сопоставляли с расчетами в программе IMBA (Integrated Modules for Bioassay Analysis, разработка British Nuclear Fuels, Westlakes Research Institute и National Radiological Protection Board), где в качестве значений задавались параметры логнормальных распределений, АМАД И βo которыми аппроксимировались представленные на рис.За-б гистограммы (определены по стандартной процедуре обработки данных с помощью импактора). Результаты приведены в табл. 2.

Как видно, в первом случае (одномодальное распределение) результаты расчетов достаточно хорошо согласуются между собой (относительная погрешность варьируется от 8% до 13%). Во втором случае, когда полимодальный спектр аппроксимируется логнормальным распределением, относительная погрешность варьируется от 7% (отдел ET<sub>1</sub>) до 43% (отдел bb). Таким образом, предлагаемый метод позволяет снизить ошибку при оценке дозы внутреннего облучения при ингаляционном поступлении аэрозолей с полимодальным распределением активности по размерам частиц (в данном примере – для отделов BB, bb и AI).



Рис. 3 а – одномодальное распределение активности по аэродинамическим диаметрам аэрозольных частиц (АМАД = 1 мкм  $\beta_g = 2,5$ ); б - бимодальное распределение активности по аэродинамическим диаметрам аэрозольных частиц (аппроксимация ЛНР с АМАД = 5,0 мкм  $\beta_g = 3,7$ )

Табл. 2 Доли активности аэрозолей, осажденных в респираторном тракте, рассчитанные с
помощью программы IMBA и посредством предложенного метода

Тип	Способ расцета	Доля активности в респираторном тракте, DE <sub>A</sub>					
распределения		ET1	ET2	BB	bb	AI	
Одномодальное (рис.3а)	IMBA, <b>DE</b> <sub>A1</sub>	0,28	0,35	0,019	0,015	0,095	
	Предложенный метод, <b>DE<sub>A2</sub></b>	0,31	0,38	0,021	0,014	0,085	
	$\delta = \frac{ DE_{A1} - DE_{A2} }{DE_{A1}}$	13%	8%	8%	8%	11%	

10

Тип		Поля активности в респираторном тракте DF.					
ТИП	Способ расчета	доля	активност	и в респира	торном трак	TE, DEA	
распределения	enotes pue teru	ET1	ET2	BB	bb	AI	
Полимодальное (рис.3б)	IMBA, <b>DE</b> <sub>41</sub>	0,30	0,35	0,015	0,010	0,055	
	Предложенный метод, <b>DE<sub>A2</sub></b>	0,28	0,31	0,011	0,007	0,042	
	$\delta = \frac{ DE_{A1} - DE_{A2} }{DE_{A2}}$	7%	13%	36%	43%	31%	

Ожидаемая эквивалентная доза облучения торакального и экстраторакального отделов органов дыхания определена как взвешенная сумма ожидаемых эквивалентных доз облучения составляющих их тканей:

 $H_{TH} = (0,5 \cdot H_{BBseq} + 0,5 \cdot H_{BBbas}) \cdot A_{BB} + H_{bb} \cdot A_{bb} + H_{AI} \cdot A_{AI} + H_{LN_{TH}} \cdot A_{LN_{TH}}$ (5)  $H_{ET} = H_{ET1} \cdot A_{ET1} + H_{ET2} \cdot A_{ET2} + H_{LN_{FT}} \cdot A_{LN_{ET}}$ (6)

Где A<sub>T</sub> и H<sub>T</sub> – взвешивающие коэффициенты и ожидаемые эквивалентные дозы облучения соответствующих тканей T.

Ожидаемая эквивалентная доза облучения органа или ткани Т рассчитывается по формуле:

# $H_{T}(\tau) = I_{UT} \cdot h_{T}(\tau)_{U}^{inh}$

(7)

Где I<sub>UT</sub> – активность аэрозольных частиц, осажденная в области T респираторного тракта, Бк; При расчете используются значения  $\mathbf{h}_{\mathrm{T}}(\tau)_{\mathrm{U}}^{\mathrm{inh}}$  из базы данных МКРЗ (The ICRP Database of Dose Coefficients: Worker and Members of the Public) с учетом нуклидного, дисперсного состава и распределения по типам при ингаляции рассматриваемых радиоактивных аэрозолей.

 $I_{\rm UT} = I_{\rm U} \cdot DE_{\rm AT} \qquad (8)$ 

Где  $I_U$  – суммарное ингаляционное поступление радионуклида U;  $DE_{AT}$  – доля активности, осажденная в области T респираторного тракта (рассчитывается по формуле (4)).

**В главе 3** описан процесс разработки и исследований экспериментальных характеристик импактора для реализации метода оценки распределения активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта (ФРТЧ).

Описан процесс расчета геометрических параметров каскадов, при которых обеспечиваются требуемые значения D<sub>50</sub> (табл.1). Для моделирования осаждения частиц применялся программный комплекс вычислительной гидродинамики Star-CCM+, в который загружалась трехмерная модель внутреннего объема отдельного каскада (рис.4), осажденными считались частицы, траектории которых пересекли коллекторную плоскость.



Рис.4 Граничные условия расчетной области модели каскада ФРТЧ (поперечный срез), 1 – стагнация на входе, 2 – поток массы, 3 – «стенка с выпуском».

Для описания движения частиц дисперсной фазы применялась Лагранжева модель, которая позволяет решить задачу об эффективности улавливания частиц статистически. Полученное этим способом решение для всех частиц строится по принципу обобщения поведения в потоке группы частиц (порядка 1000). Проводилось моделирование осаждения монодисперсных аэрозолей в диапазоне размеров от 0,3 мкм до 30 мкм, плотность частиц  $\rho_p$ =1000 кг/м<sup>3</sup>. В результате моделирования были получены графики зависимости эффективности осаждения частиц на каскадах от аэродинамического диаметра (рис. 5), по которым были определены значения D<sub>50</sub> каскадов.



Рис. 5 График зависимости эффективности осаждения от аэродинамического диаметра частиц для различных каскадов ФРТЧ (результат моделирования в Star-CCM+)

Общий вид устройства представлен на рис.6а. ФРТЧ состоит из нижней части корпуса 1 (рис.6б), верхней части корпуса 2 и каскадов, размещенных в пробоотборной корзине 3, что обеспечивает оперативность их замены. К верхней части корпуса 2, посредством резьбового соединения присоединяется штуцер 29, обе части корпуса соединяются при помощи крепежных винтов 30, для уплотнения используются прокладки 31, 32. В нижней части корпуса 1 находится штуцер 33 для подсоединения побудителя расхода. Технология изготовления устройства отработана на базе ООО НПП «Доза».





Рис.6 Общий вид (а) и поперечный срез (б) ФРТЧ

Исследования экспериментальных характеристик устройства проводились на базе специального стенда (фанерный куб объемом 8 м<sup>3</sup>). Счетная концентрация аэрозолей на входе из ФРТЧ 4 (рис.7) с одним каскадом измерялась посредством двух шестиканальных оптических счетчиков HandHeld 3016 IAQ, подключенных посредством изокинетических трубок 3. Для повышения эффективности осаждения на поверхность коллекторной пластины каскада предварительно наносилась вакуумная смазка. В качестве источника полидисперсных аэрозолей применялась поваренная соль. Частицы NaCl распылялись из пластикового дозатора 8 (с диаметром сопла ~ 8 мм), подвешенного к потолку стенда (всего в эксперименте использовалось 4 дозатора, которые последовательно запускались в работу). На дне стенда был размещен вентилятор 9 для замедления процесса седиментации. Для предотвращения засорения побудителя расхода 7 в схему был включен аллонж 6 с фильтром. Выбор солей NaCl обусловлен необходимостью применения вещества

с известной плотностью для перехода от физического диаметра, измеряемого оптическими счетчиками, к аэродинамическому.



 Оптический счетчик, измеряющий счетную концентрацию аэрозолей на входе в импактор;
 Оптический счетчик, измеряющий счетную концентрацию на выходе;
 изокинетические трубки;
 ФРТЧ с одним каскадом;
 цифровой ротаметр TSI;
 аллонж с фильтром;
 побудитель расхода;
 пластиковый дозатор с NaCl;
 вентилятор

Рис. 7 Схема экспериментальной установки

Как видно из табл.3, экспериментальные значения  $D_{50}$  для первых четырех каскадов находятся в достаточно хорошем соответствии с требуемыми значениями (относительная погрешность варьируется от 2 до 15%). Наибольшие различия (как в эксперименте, так и по численному моделированию) наблюдаются для двух последних каскадов. В случае эксперимента, это может быть связано с малым количеством каналов применяемых оптических счетчиков, отклонениями в диаметрах сопел при изготовлении устройства, в случае CFD-моделирования – указывает на необходимость проведения моделирования на сетке с меньшим размером ячеек.

Табл 3 С	равнение экспе	риментальных и	и численных	значений D50
14031.5 C	publicinic siteric		1 Intesternindin	

Каскад		D <sub>50</sub> , мкм	δ		
	Требуемый	CFD	Эксп	CFD	Эксп
1	9,0	10,3	8,4	14%	7%
2	5,9	7,3	6,0	24%	2%
3	4,7	4,8	5,4	2%	15%
4	3,3	4,0	3,0	21%	9%
5	1,1	1,7	1,6	55%	45%
6	0,43	0,76	0,83	77%	93%

Описан пример применения ФРТЧ в 2013 г. на ФГУП «ПО «Маяк» на производстве нейтронных источников на основе <sup>241</sup>Am-Be. Пробы воздуха в помещении операторской отбирались с помощью разработанного ФРТЧ и каскадного импактора Андерсена. Результаты расчета АМАД по данным альфа-радиометрии на радиометре УМФ-2000 представлены в табл.4.

Табл. 4 Результаты исследования дисперсности аэрозолей в операторской 319 цепочки Н завода 45 ФГУП «ПО «Маяк».

Импактор	Фракция I			Фракция II			
	АМАД, мкм	$\beta_{g}$	$\mathbf{k}_1$	АМАД, мкм	$\beta_g$	k <sub>2</sub>	
ФРТЧ	0,8	3,0	43%	9,3	1,7	57%	
Импактор Андерсена	1,2	2,2	18%	10,1	1,7	82%	

k<sub>1</sub>, k<sub>2</sub> - доля активности с данным АМАД

С учетом установленного в ходе исследований радионуклидного состава: <sup>241</sup>Am – 65%, <sup>238+239</sup>Pu – 35% и типа химического соединения при ингаляции – М (доля активности,

перешедшая в имитатор легочной жидкости на 30 сутки составила 3,6%, на 180 сутки – 5%) были рассчитаны значения дозовых коэффициентов, ПГП и ДОА (табл.5)

Табл.5 Дозовый коэффициент, ПГП и ДОА для операторской 319, цеп.Н завод 45 ФГУП «ПО «Маяк»

Нуклид	Нукли дный состав	Тип соед. при	Средний актив аэроз данным	й вклад в вность олей с 1 АМАД	Доз.коэф МКРЗ для АМАД, Зв/Бк		ад в ь Доз.коэф МКРЗ для с АМАД, Зв/Бк Доз.коэф ПГП, АД Зв/Бк Бк		ПГП, Бк	ДОА, Бк/м3
		инг.	1 мкм	10 мкм	1 мкм	10 мкм				
<sup>241</sup> Am	0,65	П	0.3	0.7	3,9E-05	1,7E-05	1 9E 05	1100	0.45	
<sup>239</sup> Pu	0,35	М	0,5	0,7	1,5E-05	5,9E-06	1,0E-03	1100	0,43	

Для оценки ОЭД персонала на предприятии используют дозовый коэффициент для <sup>241</sup>Am соответствующий АМАД 1 мкм (3,9E-05 Зв/Бк, Приложение 1 к НРБ-99/2009). Применение рассчитанных в ходе исследований дозовых коэффициентов - 1,8E-05 Зв/Бк для операторской и 1,7E-5 Зв/Бк для ремонтной зоны, позволяет устранить возможное систематическое завышение ОЭД для лиц из персонала в 2 раза.

Рассчитанные значения ожидаемых эквивалентных доз облучения в год экстраторакального  $H_{ET}$  и торакального  $H_{TH}$  отделов составили 21 мкЗв и 1,7 мкЗв соответственно (табл.6)(без учета активности, депонированной в лимфатических узлах).

Табл.6 Активность аэрозольных частиц, осажденных в отделах респираторного тракта и рассчитанные значения H<sub>ET</sub> и H<sub>TH</sub>.

Ингаляционное	Активность аэрозольных частиц,						
поступление,	0	сажденных в	отделах рес	пираторног	о тракта, Бк		
Бк в год	ET1	ET2	BBsec	BBbas	bb	AI	
2,2	0,64	0,71	0,015	0,015	0,02	0,11	
h <sub>T</sub> (50) <sup>inh</sup> , Зв/Бк*	1,6E-05	3,0E-05	4,7E-05	5,5E-06	3,0E-05	3,5E-05	
Н <sub>т</sub> , мкЗв	1,0E-05	2,1E-05	6,8E-07	8,0E-08	6,6E-07	3,9E-06	
A <sub>T</sub>	0,001	1,0	0,167	0,167	0,333	0,333	
Н <sub>ЕТ</sub> , мкЗв	21						
Н <sub>ТН,</sub> мкЗв	1,7						

\* с учетом нуклидного, дисперсного состава и распределения по типам при ингаляции Представлены результаты работ по исследованию физико-химических характеристик радиоактивных аэрозолей на участке металлургии XM3 АО «СХК» с применением ФРТЧ.

Размерный спектр активности аэрозольных частиц в операторской носит бимодальный характер со значительным вкладом в суммарную активность грубодисперсных аэрозолей (рис.8 а,б). Среднее значение АМАД первой фракции (по двум пробам, отобранным в операторской) составило 8,9 мкм ( $\beta_g = 3,8$ , вклад в суммарную активность 16%), среднее значение АМАД грубодисперсной фракции: 35 мкм ( $\beta_g = 1,5$ , вклад в суммарную активность 84%). Значение АМАД в ремзоне составило 21 мкм,  $\beta_g = 2,6$ . Рассчитанные значения дозового коэффициента, ПГП и ДОА с учетом нуклидного состава и типа при ингаляции представлены в табл.7 (для консервативной оценки в расчете использовались дозовые коэффициенты из базы данных МКРЗ для АМАД 5 мкм).



а) Точка № 12 ФРТЧ, все каскады

б) Точка № 9 АИП все каскады

Рис. 8 Распределения активности по аэродинамическим диаметрам в операторской зоне на участке металлургии XM3 (по результатам альфа-радиометрии).

Табл. 7 Дозовый коэффициент, ПГП и ДОА для участка металлургии XM3 (операторская и ремзона), установленные в результате исследований.

-										
АМАД,	Тип при	Доз.коэф из базы МКРЗ для Нуклидный состав			Доз.коэф.для	ΠΓΠ,	ДОА,			
МКМ	ингаляци	данного А	АМАД, Зв/Е	бк				данного	Бк	Бк/м <sup>3</sup>
	И	Pu-239	Pu-238	Am-	Pu-239	Pu-238	Am-241	нуклидного		
				241				состава, Зв/Бк		
5	П	3,2E-5	3,0E-5	2,7E-5	53,9%	0,6%	45,4%	3,0E-5	670	0,28

Дозиметрический контроль на предприятии ведется по <sup>239</sup>Pu тип П (дозовый коэффициент – 4,7E-05 Зв/Бк). Применение рассчитанного в ходе исследований значения дозового коэффициента (табл.7) позволяет устранить систематическое завышение оценки ОЭД для лиц из персонала в 1,6 раз. Полученное значение ДОА (табл.7) менее консервативно (в 8,8 раз), по сравнению с используемым на предприятии (0,032 Бк/м<sup>3</sup>).

Объемная активность в операторской на участке металлургии XM3 по данным альфарадиометрии каскадов ФРТЧ составила 0,05 Бк/м<sup>3</sup>. При годовом объеме вдыхаемого воздуха для персонала 2400 м<sup>3</sup> (п.8.2 НРБ-99/2009) ингаляционное поступление в год составит 120 Бк. Рассчитанные значения ожидаемых эквивалентных доз облучения в год экстраторакального  $H_{\rm ET}$  и торакального  $H_{\rm TH}$  отделов составили 510 мкЗв и 4,8 мкЗв соответственно (табл.8)(без учета активности, депонированной в лимфатических узлах).

Табл.8 Активность аэрозольных частиц	, осажденных в	в отделах	респираторного	тракта	(для
распределения на рис.8а) и рассчитанные	е значения H <sub>ET</sub>	и H <sub>TH</sub>			

Ингаляционно	Активность аэрозольных частиц, осажденных в отделах респираторного									
e		тракта, Бк								
поступление, Бк в год	$ET_1$	$ET_2$	BBsec	BBbas	bb	AI				
120	35	36	0,24	0,24	0,24	0,96				
h <sub>T</sub> (50) <sup>inh</sup> , Зв/Бк	1,5E-05	1,4E-05	3,6E-05	4,8E-06	1,5E-05	6,1E-06				
Н <sub>т</sub> , мЗв	0,53	0,51	0,009	0,001	0,004	0,006				
A <sub>T</sub>	0,001	0,998	0,167	0,167	0,333	0,333				
Н <sub>ЕТ</sub> , мкЗв	510									
Н <sub>ТН,</sub> мкЗв	4,8									

\* с учетом нуклидного, дисперсного состава и распределения по типам при ингаляции Представлены результаты исследований дисперсного состава радиоактивных аэрозолей на СЗ (производство сырьевого ГФУ) в 2017 году с применением ФРТЧ.

Вследствие сильной запыленности воздуха рабочей зоны, и образования крупного осадка из нерадиоактивной пыли на подложках импакторов, альфа-частицы имеют высокое

15

и неравномерное самопоглощение по каскадам. Наиболее характерно образование осадка на первых и последних каскадах (на рис.9 а,б в качестве примера показан последний каскад импактора ФРТЧ). С учетом нуклидного состава аэрозолей воздушной среды (в большинстве проб до 48% активности приходится на U-238) счет по бета-каналу будет определяться <sup>234m</sup>Pa (ДПР <sup>238</sup>U) с  $E_{max} = 2,3$  МэВ и выходом 98,2% ( $T_{1/2} = 1,17$  мин). Вследствие чего более корректным являлось определение АМАД по активности <sup>238</sup>U, пропорциональной счету радиометра в бета-канале.



Рис. 9 а - Иглообразный осадок на последнем каскаде ФРТЧ; б - снимок тех же иглообразных осадков с помощью цифрового светодиодного микроскопа Gaosuo x1000

Как видно из табл.9, дисперсный состав аэрозолей СЗ на всех отметках (кроме узла выгрузки и отделения готовой продукции) характеризуется АМАД в диапазоне от 1,8 мкм до 6,2 мкм, со средним значением АМАД 3,2 мкм и  $\beta g = 2,7$ . Наибольший вклад торакальной фракции (75-80%) был зафиксирован в точках 202в отметка +11,3м (у стола для снятия крышек контейнеров) и в 212н отметка 0 (отделение десублимации UF<sub>6</sub>). Полученные распределения активности по размерам частиц (с учетом первого каскада) представлены на рис. 10-11.

Рассчитанные значения дозовых коэффициентов, ПГП и ДОА с учетом установленных в ходе работы физико-химических характеристик радиоактивных аэрозолей, представлены в табл.10.

В настоящее время для дозиметрического контроля на C3 используют значение ДОА 1 Бк/м<sup>3</sup>. Полученное значение ДОА менее консервативно (в 3,8 раза) за счет значительного присутствия соединений с быстрым типом химического соединения при ингаляции в воздушной среде, по всей видимости, за счет уранил-фторида, который образуется при гидролизации ГФУ.

-		-								
				Импактор	Торакальная фракция			Экстраторакальная фракция		
№ пробы	Точка	Отме тка, м	Характеристика точки		АМАД, мкм	βg	Активность с данным АМАД, %	АМАД, мкм	Активность с данным АМАД, %	Вид анализа
1	202в	11,3	У стола для снятия крышек контейнеров	ФРТЧ	1,8	2,7	80,3	> 16	19,7	U-238 α
7	212в	8,5	Десублиматоры 212/1,2	ФРТЧ	2,9	3	27,4	> 15,6	72,6	β
12	213	8,6	Аппарат комбинированно го типа 213/1**	ИРАМ-2-4И	6,2	2,9	100*	-	-	β
4	213	6,3	Циклоны- обеспыливатели 217/2, 217/3	АИП-2	3,2	2,6	33,2	> 23,3	66,8	β
9	226	6,3	Реактор гидрофторирован ия 226	АИП-2	3,1	3,0	60,3	> 22,1	39,7	U-238 γ (πο Th- 234)
5	212н	0	Десублиматоры 211/1,2	АИП-2	2,0	2,4	75,2	> 19,2	24,8	U-238 γ (πο Th- 234)
11	210/3	0	Десублиматор 210/3	АИП-2	3,5	2,3	36,7	> 25,3	63,3	β
10	202н	0	Узел выгрузки огарков из	ИРАМ-2-4И	11,9	4,6	100*	-	-	U-238 γ (πο Th- 234)
14	202н	0	пламенного	ИРАМ-2-4И	22	4,6	100*	-	-	β
15	202н	0	реактора	ИРАМ-2-4И	5,9	3,3	100*	-	-	β
13	Отделение готовой продукции	0	-	SKC Sioutas	0,5	2,4	100*	-	-	Am-241 γ

Табл.9 Дисперсный состав радиоактивных аэрозолей производства № 2 СЗ

\* приведены значения АМАД для *всех* взвешенных в воздухе частиц (без отсечки экстраторакальной фракции)

\*\* Улавливание остаточных количеств UF<sub>6</sub>, F<sub>2</sub> и HF из технологического газа после прохождения десублиматоров



Рис.10 Точка 202в, у стола для снятия крышек контейнеров, <sup>238</sup>U α, ФРТЧ





Табл.10 Значения дозовых коэффициентов, ПГП и ДОА для производства сырьевого ГФУ СЗ

АМАД,	Доля фра	кций по раств	оримости	Доз.коэф.,	ПГП, Бк	ДОА, Бк/м <sup>3</sup>
МКМ	Б	П	М	Зв/Бк		
5	80%	18%	2%	2,2E-06	9,0E+03	3,8

Глава 4 посвящена разработке способа оценки ингаляционного поступления радиоактивных газо-аэрозольных смесей на основе раздельного анализа фазового и дисперсного состава. Предлагаемый способ включает в себя:

- 1) Отделение аэрозольной фракции от газовой инерционным осаждением на каскадах импактора;
- 2) Химическое преобразование газовой составляющей газо-аэрозольной смеси в аэрозольную фракцию путем ввода паров реагента в газовый поток;
- 3) Осаждение полученных частиц на фильтр.

Известны способы очистки газов от рутения путем пропускания его через слой сорбента, представляющего собой огнеупорный кирпич, импрегнированный окислами железа, сетку из нержавеющей стали или силикагель. На огнеупорном кирпиче сравнительно небольшие коэффициенты очистки (50 – 100) достигаются за счет применения очень высоких температур (до 800 <sup>0</sup>C), кроме того, емкость этого сорбента по рутению крайне мала. Применение сетки из нержавеющей стали нецелесообразно из-за низких коэффициентов очистки и малой емкости (8 г рутения на 1 м<sup>3</sup> насадки). В случае силикагеля при низких температурах достигается достаточно высокий коэффициент очистки. Однако из-за малой емкости сорбента (0,29 г/м<sup>3</sup> насадки) необходимо применять большие объемы колонн, регенерация которых приводит к образованию значительных количеств жидких радиоактивных отходов

В качестве реагента целесообразным представляется применение этанола поскольку известно, что тетраоксид рутения RuO<sub>4</sub> активно взаимодействует с этанолом, при этом образуется двуокись рутения RuO<sub>2</sub> и продукты окисления этанола. Двуокись рутения RuO<sub>2</sub> является твердым веществом и ее улавливают посредством фильтрации. Реакции имеют вид:

 $RuO_4 + 2C_2H_5OH \rightarrow RuO_2 + 2CH_3COH + 2H_2O \qquad (9)$ 

$$RuO_4 + C_2H_5OH \rightarrow RuO_2 + CH_3CO_2H + H_2O$$
(10)

В случае гексафторида урана в качестве реагента может быть применен водный раствор аммиака. Реакции имеют вид:

 $UF_{6} + 0.67NH_{3} = UF_{4} + 0.33N_{2} + 2HF$   $UF_{6} + 2H_{2}O \rightarrow UO_{2}F_{2} + 4HF$ (11)
(12)

Устройство для предлагаемого метода реализации (рис.12а), состоит ИЗ расположенных последовательно импактора и химического реактора, и присоединенной к реактору емкости для реагента, преобразующего газовую составляющую газо-аэрозольной смеси в аэрозоль. Химический реактор представляет собой полую емкость, на входе в которую расположены два штуцера: штуцер 1 для подачи незначительной части газового потока (от 0,8% при объемном расходе 20 л/мин, до 1% при 50 л/мин) в емкость с реагентом и штуцер 2 для подачи паров реагента из емкости в реактор. На выходе из реактора находится фильтр, улавливающий образовавшиеся частицы. Активность исследуемого радионуклида, осажденного на фильтре, определяется с помощью гамма- (либо альфа)спектрометрической установки.

Долю объемной активности, приходящуюся на газовую фракцию,  $\Delta C_{\Gamma}$  определяют по формуле:

 $\delta C_{\Gamma} = C_{\Gamma} / (C_{\Gamma} + C_{app})$ (13)

Где С<sub>аэр</sub> – объемная активность аэрозольной фракции радионуклида; С<sub>Г</sub> – объемная активность газовой фракции радионуклида,  ${\rm Kk/m}^3$ 



Рис. 12 Устройство для реализации способа оценки ингаляционного поступления радиоактивных газо-аэрозольных смесей на основе раздельного анализа фазового и дисперсного состава данной смеси: а – схема; б – общий вид.

В главе 5 изложено численное моделирование течения воздушной среды в устройстве для реализации способа оценки ингаляционного поступления радиоактивных газоаэрозольных смесей, выполненное с помощью программного комплекса Star-CCM+. В ходе моделирования установлено оптимальное значение угла расширения диффузора - 15<sup>0</sup>, при котором достигается ламинарность потока в реакционной камере и обеспечивается минимизация осаждения аэрозолей на внутренней поверхности реакционной камеры химического реактора.

Описано применение устройства на СЗ и ЗРИ АО «СХК» для оценки доли газообразной фракции ГФУ. На C3 вместо импактора для отсечки аэрозольной фракции на входе устройства устанавливалось 2 фильтра АФА-РСП-20. В качестве реагента использовался 10% водный раствор аммиака. Газообразная фракция улавливалась фильтром АФА-РСП-20, установленным на выходе из устройства. После транспортировки в лабораторию фильтры подвергались радиохимической пробоподготовке, полученные счетные образцы измерялись на альфа-спектрометрах Alpha-DUO и Мультирад-АС. По  $(^{234}\text{U}+^{235}\text{U}+^{238}\text{U})$ доля результатам альфа-спектрометрии газообразного ΓФУ V десублиматоров 212, 210 на нулевой отметке варьировалась от 1,2 до 5,2%. Доля ГФУ на отметке +6,3 м у реактора гидрофторирования составила 0,9% (проба 4, табл.11). Доля субмикронных аэрозолей, определенная по активности на втором фильтре (устанавливался после первого аэрозольного фильтра, чтобы исключить проскок), оказалась незначительной и варьировалась от 0,2 до 2,9%.

На ЗРИ в зд.1004 коллектор № 2 (конденсационно-испарительные установки) были установлены последовательно расположенные импактор АИП-2 и химический реактор. Доля газообразного ГФУ по результатам альфа-радиометрии составила 0,52% (в графе «1» табл.11 проба 6, указана суммарная активность альфа-излучающих радионуклидов на каскадах импактора).

19

Nº	Точка	Отм.	Активност	ь <sup>234</sup> U+ <sup>235</sup> U+ <sup>238</sup> U 2	на фильтре, Бк	Доля ГФУ	Объемная активность ГФУ, Бк/мЗ	Доля активнос ти на 2-м фильтре
1	212н	0	7,0 ± 0,8	0,22 ± 0,03	0,40 ± 0,04	$5,2\% \pm 0,8\%$	$0,050 \pm 0,006$	2,9%
2	212н	0	33 ± 3	$0,58 \pm 0,07$	0,41 ± 0,06	$1,2\% \pm 0,2\%$	0,056 ± 0,009	1,7%
3	212н	0	8,0 ± 0,9	0,086 ± 0,010	0,29 ± 0,03	$3,5\% \pm 0,5\%$	0,010 ± 0,001	1,0%
4	226	6,3	53 ± 6	0,12 ± 0,02	$0,51 \pm 0,06$	$0,9\% \pm 0,2\%$	$0,008 \pm 0,001$	0,2%
5	210/3	0	53 ± 6	0,20 ± 0,03	0,69 ± 0,07	$1,3\% \pm 0,2\%$	0,013 ± 0,001	0,4%
6	зд.1004 т.12		13,4 ± 2,1	-	$0,070 \pm 0,015$	$0,52\% \pm 0,14\%$	4,5E-04 ± 9E-05	-

Табл.11 Результаты определения объемной активности газообразного UF<sub>6</sub> на C3 (п.1-5) и ЗРИ (п.6)

\* для пробы № 6 приведены данные по альфа-радиометрии

На основании данных табл.11 рассчитан вклад газообразной фракции ГФУ в годовое значение ОЭД для СЗ и ЗРИ. Дозовый коэффициент для ингаляционного поступления радиоактивных аэрозолей 2,2Е-6 Зв/Бк для производства сырьевого ГФУ СЗ был получен в ходе выполнения работ с применением разработанного ФРТЧ, описанных в главе 3 (см. табл.10). Дозовый коэффициент 2,7Е-5 Зв/Бк для аэрозолей ЗРИ получен в ходе выполнения работ, проведенных автором и представленных в отчете «Комплексное обследование радиоактивных аэрозолей производств СЗ и ЗРИ АО «СХК» (Договор № 11/6230-Д от 26.10.2016). Так как дозовые коэффициенты для газообразной фракции ГФУ в базе данных МКРЗ отсутствуют, для консервативной оценки в расчете использовались наибольшие значения дозовых коэффициентов для смеси нуклидов <sup>234</sup>U+<sup>235</sup>U+<sup>238</sup>U, соответствующие АМАД 0,03 мкм с типом при ингаляции Б. Результаты расчета представлены в табл. 12.

Табл.12 Вклад газообразной фракции ГФУ в годовое значение ОЭД на СЗ и ЗРИ

Проба	Точка	Отм	Фракция	ОА, Бк/мЗ	Доз.коф, Зв/Бк	ОЭД, мЗв в год	Вклад в ОЭД
1-3	212.	0	аэрозоль	1,95	2,20E-06	10,3	98,6%
	212H		газ	0,04	1,55E-06	0,14	1,4%
4	226	6,3	аэрозоль	0,80	2,20E-06	4,20	99,3%
			газ	0,008	1,55E-06	0,03	0,7%
5	210/3	0	аэрозоль	1,0	2,20E-06	5,37	98,7%
			газ	0,013	2,20E-06	0,07	1,3%
6	ЗРИ		аэрозоль	0,09	2,70E-05	5,53	99,97%
	коллектор №2	-	газ	4,46E-04	1,55E-06	0,002	0,03%

Как видно из табл.12 вклад газообразной фракции ГФУ в годовую ОЭД незначителен и составляет в среднем 1,1% для СЗ и 0,03% для ЗРИ.

В заключении сформулированы выводы по работе.

#### ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. Разработан аппаратурно-методический комплекс для оценки ингаляционного поступления радиоактивных газо-аэрозольных смесей на основе экспериментального определения объемной активности:

- аэрозольной фракции с учетом распределения активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта и
- газовой фракции путем ее преобразования в аэрозольную фракцию,

позволяющий повысить точность оценки дозы внутреннего облучения лиц из персонала и населения при ингаляционном поступлении радиоактивных газо-аэрозольных смесей в различных ситуациях облучения (включая аварийные) за счет получения экспериментальных данных о дисперсном составе, о распределении активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта, о фазовом составе (соотношение объемных активностей газ/аэрозоль) газо-аэрозольной смеси.

2. Разработан метод оценки активности аэрозольных частиц, осажденных в отделах дыхательного тракта на основе экспериментальных данных, полученных с помощью импактора. Предложенный метод позволяет оценить активность аэрозольных частиц, осажденных в различных отделах дыхательного тракта согласно дозиметрической модели Публикации 66 МКРЗ, независимо от типа распределения активности аэрозолей по размерам частиц.

3. Разработана конструкция импактора-фантома респираторного тракта человека для реализации метода оценки активности аэрозольных частиц по отделам дыхательного тракта. В результате численного моделирования и экспериментальных исследований получены зависимости эффективности осаждения от аэродинамического диаметра аэрозольных частиц на каскадах данного устройства.

4. Разработано устройство, состоящее из размещенных последовательно импактора и химического реактора, для оценки ингаляционного поступления радиоактивных газоаэрозольных смесей на основе анализа фазового (соотношение объемных активностей газ/аэрозоль) и дисперсного состава данной смеси. Установлена принципиальная возможность применения этанола в качестве реагента для преобразования газовой фракции газо-аэрозольных смесей, содержащих рутений, в аэрозольную фракцию.

5. Производственные исследования, проведенные на различных участках технологической цепочки Н завода 45 ФГУП «ПО «Маяк» с помощью разработанного импактора-фантома, позволили установить реальные характеристики ингаляционного поступления радионуклидов в организм персонала и устранить систематическое завышение оценки ожидаемой эффективной дозы в 2 раза (акт о внедрении результатов диссертационной работы на ФГУП «ПО «Маяк» № 193-5-5.5/3297 от 9.12.2015).

6. Дозовые коэффициенты, рассчитанные с учетом физико-химические характеристик радиоактивных аэрозолей, установленных в результате производственных исследований, выполненных на Химико-Металлургическом и Сублиматном заводах АО «СХК» с помощью импактора-фантома, позволили устранить систематическое завышение оценки ожидаемой эффективной дозы для персонала Химико-Металлургического завода в 1,6 раз (акт о внедрении результатов диссертационной работы на АО «СХК» № 106-08/470 от 3.04.2015) и для персонала Сублиматного завода – в 3,8 раз.

## ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Моделирование и разработка импактора-фантома респираторного тракта человека / А.Г. Цовьянов, Е.А. Крамер-Агеев, Д.Е. Фертман, А.И. Ризин, А.Е. Карев, Ю.Н. Мартынюк // АНРИ. -2013.- №3 (74). - С. 52 – 60. (РИНЦ)

- Радиационный контроль аэрозолей в субмикронном диапазоне, включая наноаэрозоли. Прогноз развития / А.И. Ризин, Д.Е. Фертман, А.Г. Цовьянов, А.Е. Карев // Ядерные измерительно-информационные технологии. – 2013. - №2 (46). -С.44 – 55. (РИНЦ)
- 3. Метод и устройство для измерения объемной активности газовой и аэрозольной фракций радиоактивных аэродисперсных систем / А.Г. Цовьянов, А.Е. Карев // Саратовский научно-медицинский журнал.- 2013. Т. 9. № 4. С. 821–824.
- 4. Применение соглашения о вдыхаемой, торакальной и респирабельной фракциях (ГОСТ Р ИСО 7708-2006) для стационарного и индивидуального контроля объемной активности радиоактивных аэрозолей на предприятиях атомной отрасли / Карев А.Е., Шинкарев С.М., Цовьянов А.Г. // АНРИ. -2015.- №4 (83). С. 43 50. (РИНЦ)
- 5. Решение задач практической дозиметрии сложных радиоактивных газоаэрозольных смесей в контексте аварийного реагирования/ Карев А.Е., Цовьянов А.Г., Шинкарев С.М.// АНРИ. -2016.- №1 (84). С. 55 59. (РИНЦ)
- 6. Метод определения дисперсного состава радиоактивных аэрозолей на основе инерционных разделителей / Карев А.Е., Цовьянов А.Г., Припачкин Д.А., Будыка А.К., Юзеф Хусейн Надиль // АНРИ. -2016.- №3 (86). С. 57 63 (РИНЦ)
- 7. Метод оценки осаждения частиц радиоактивных аэрозолей в дыхательном тракте человека / Карев А.Е., Цовьянов А.Г., Кухта Б.А., Шинкарев С.М., Припачкин Д.А. // Проблемы безопасности и чрезвычайных ситуаций -2016.- №5. С. 23-31 (РИНЦ)
- 8. Пат. 2480730. Рос. Федерация: Устройство для измерения дисперсности и контроля объемной активности газовой и аэрозольной фракции радиоактивного рутения: МПК G01N 1/22, G01N 15/00 / Цовьянов А.Г., Ризин А.И., Фертман Д.Е., Карев А.Е., Камарицкая О.И.; заявитель и патентообладатель Федеральное государственное учреждение "Государственный научный центр Российской Федерации Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна". 2011147487/05; заявл. 23.11.2011, опубл. 27.04.2013, Бюл. № 12 13 стр., 6 илл.
- 9. Пат. 2509375. Рос. Федерация: Импактор-фантом респираторного тракта человека: МПК G09B23/28 / Цовьянов А.Г., Кухта Б.А., Карев А.Е.; заявитель и патентообладатель Федеральное государственное бюджетное учреждение "Государственный научный центр Российской Федерации Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна". - 2012121978/14; заявл. 29.05.2012, опубл. 10.03.2014, Бюл. № 34 – 17 стр., 6 илл.
- 10. Методика измерений «Определение характеристик распределения радиоактивного аэрозоля по размерам с помощью импактора-фантома респираторного тракта человека», свидетельство об аттестации № 7-4/25.01.00087-2015 от 7.10.2015, зарегистрирована в Федеральном информационном фонде по обеспечению единства измерений под номером ФР.1.31.2016.23130.
- 11. Karev A., Tsovianov A., Shinkarev S. Estimation of inhalation intake of complex radioactive gas-aerosol mixtures in case of emergency response // Supplement to Health Physics vol.109, № 1, July 2015 p.110, 60<sup>th</sup> Annual meeting of the Health Physics Society, Indiana, USA, 14 18 July 2015.
- 12. A.G. Tsovyanov, A.E. Karev «Method and device for inhalation intake assessment of radioactive gas-aerosol mixtures // FILTECH 2015p.50, Cologne, Germany, 24-26 February 2015.
- 13. А.Г. Цовьянов, А.Е. Карев «Разработка аппаратурно-методического комплекса для контроля ингаляционного поступления радиоактивных аэрозолей» // Сборник тезисов докладов девятой международной научно-технической конференции «Безопасность, эффективность и экономика атомной энергетики», с.170 (Москва, 21–23 мая 2014 года)

- 14. А.Г. Цовьянов, А.Е. Карев, А.И. Ризин, Д.Е. Фертман «Разработка метода преобразования радиоактивных газоаэрозольных смесей в дисперсную фазу и устройство для его реализации» // Проблемы обеспечения взрывобезопасности и противодействия терроризму. Труды Восьмой Всероссийской научно-практической конференции / Научные редакторы В.А. Петров, М.В. Сильников. СПб.: Любавич, 2013. с.120
- 15. A.G. Tsovyanov, A.E. Karev, E.A. Kramer-Ageev «Instrumental and methodological complex for monitoring inhalation intake radioactive aerosols» // FILTECH 2013 p.61, Wiesbaden, Germany, 22-24 October 2013.
- 16. Карев А.Е., Цовьянов А.Г., Моделирование осаждения аэрозольных частиц в импакторной модели фантома респираторного тракта человека // Научная сессия НИЯУ МИФИ- 2012, Аннотация докладов Т.1 (г. Москва)
- 17. Карев А.Е., Цовьянов А.Г., Ризин А.И., Фертман Д.Е. Устройство для измерения дисперсности и объемной активности аэрозольной и газовой фракций радиоактивного рутения // Научная сессия НИЯУ МИФИ- 2012, Аннотация докладов Т.1 (г. Москва).