*На правах рукописи*

**ХУСЕЙН ЮСЕФ НАБИЛЬ**

# ОПЕРАТИВНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК АЛЬФА-АКТИВНЫХ АЭРОЗОЛЕЙ ДЛЯ ОБОСНОВАНИЯ БЕЗОПАСНОСТИ ОБЪЕКТОВ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ

05.14.03 – Ядерные энергетические установки, включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации

**АВТОРЕФЕРАТ**
Диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

2 6 ДЕК 2018

*Автор:* Yousef N. H.

008699733

Москва 2019

Работа выполнена в Национальном исследовательском ядерном университете «МИФИ»

| | |
|---|---|
| **Научный руководитель:** | Будыка Александр Константинович, доктор физико-математических наук, профессор, НИЯУ МИФИ. |
| **Научный консультант:** | Припачкин Дмитрий Александрович, кандидат физико-математических наук, доцент, НИЯУ МИФИ. |
| **Официальные оппоненты:** | Минашкин Вячеслав Михайлович, доктор технических наук, профессор, заведующий лабораторий, АО «НИФХИ им. Л.Я. Карпова», г. Москва. |
| | Сухоручкин Андрей Константинович, кандидат физико-математических наук, начальник лаборатории, НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва. |
| **Ведущая организация:** | Государственный научный центр – Федеральный медицинский биофизический центр им. А.И. Бурназяна, г. Москва. |

Защита состоится « 30 » января 2018 г. в 16 час 30 мин. на заседании диссертационного совета Д 212.130.04 НИЯУ МИФИ по адресу: 115409, Москва, Каширское шоссе, 31.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ.

Автореферат разослан « » _____ 2018 г.

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в двух экземплярах, заверенных печатью организации, по адресу НИЯУ МИФИ.

Ученый секретарь диссертационного совета Д.212.130.04,
доктор физико-математических наук, профессор И.И. Чернов

# ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

**Актуальность**

Методы обоснования безопасности объектов использования атомной энергии (ОИАЭ), к которым относятся атомные электрические станции, исследовательские и промышленные реакторы, обогатительные и радиохимические производства и др., должны учитывать фактор радиоактивных аэрозолей, образующихся при нормальной эксплуатации объектов ядерной техники и в аварийных ситуациях. Системы безопасности таких объектов должны содержать устройства контроля характеристик радиоактивных аэрозолей, обеспечивающие не только нормальное протекание технологических процессов, но и безопасность персонала.

Наибольшее распространение получили методы определения характеристик радиоактивных аэрозолей, основанные на концентрировании дисперсной фазы при ее осаждении на препятствиях, например, на каскадах импактора или на волокнах пакета фильтров. Устройства, реализующие такие методы, используются как накопители фракций спектра размеров аэрозольных частиц в рабочей зоне или в технологических помещениях или коммуникациях. Измерив отобранные пробы, определяют объемную активность, радионуклидный состав и дисперсность (распределение по размерам) радиоактивных аэрозолей.

Содержащие альфа-активные нуклиды, радиоактивные аэрозоли представляют наибольшую опасность при их ингаляционном поступлении в организм. Из-за малого пробега альфа-частиц в среде для подготовки образцов для спектрометрических измерений аэрозолей необходимо применять весьма длительные и трудоемкие процедуры подготовки проб, часто с использованием радиохимических методов. Для увеличения точности спектрометрические измерения как правило проводят в вакууме. Длительность полного цикла исследований (отбор пробы, ее подготовка к измерению, процедура измерения, интерпретация результатов) может достигать нескольких суток, в течение которых (в случае возникновения нештатных ситуаций или отклонений от нормальных условий эксплуатации объекта) принятие оптимальных решений для минимизации ущерба будет затруднено.

Оперативность получения информации с сохранением приемлемой точности может быть существенно повышена, если для оценки характеристик радиоактивных аэрозолей применить компактное устройство, совмещающее в себе блок для выделения заданных размерных фракции аэрозолей и альфа-спектрометр, работающий при нормальном атмосферном давлении.

Однако устройства, позволяющие относительно оперативно определить объемную активность, нуклидный и дисперсный состав альфа-активных аэрозолей, в настоящее время отсутствуют. Для их создания необходимо разработать метод оценки, т.е. решить ряд задач, связанных с выделением фракций радиоактивных аэрозолей заданного размерного диапазона,

определением распределения аэрозолей по размерам по измеренным активностям фракций, минимизацией энергетического разрешения спектрометра при нормальном атмосферном давлении и т.д.

Таким образом, разработка метода оперативной оценки характеристик радиоактивных аэрозолей для обоснования безопасности ОИАЭ с помощью устройства, содержащего пробоотборную и спектрометрическую части, работающие при нормальном атмосферном давлении, является актуальной научной задачей.

**Цель работы**

Целью работы явилась разработка и техническая реализация метода оперативной оценки характеристик и исследования свойств альфа-активных аэрозолей для обоснования безопасности ОИАЭ, предполагающего сопряжение в одном устройстве элементов инерционного разделителя, волокнистого фильтра и полупроводникового спектрометра с коллиматором, работающего при нормальном атмосферном давлении.

Для достижения поставленной цели были решены следующие задачи:

1. Расчет и экспериментальные определения эффективности разделения спектра аэрозольных частиц на размерные фракции с помощью однокаскадного инерционного разделителя. Расчет однокаскадного инерционного разделителя и экспериментальное исследование эффективности разделения аэрозолей на размерные фракции.
2. Оценка параметров распределения радиоактивных аэрозолей по размерам (активностного медианного аэродинамического диаметра, АМАД, и стандартного геометрического отклонения, СГО) на основе нескольких измеренных однокаскадным разделителем размерных фракций и минимизации функции невязки между экспериментальными и теоретическими данными.
3. Исследование влияния коллимации альфа-частиц на характеристики полупроводникового спектрометра, предназначенного для измерения проб радиоактивных аэрозолей при нормальном атмосферном давлении.
4. Выполнение серии калибровок полупроводникового спектрометра с помощью образцового спектрометрического альфа-источника (ОСАИ), специального аэрозольного источника (САИ), равновесного спектра отобранных на волокнистый фильтр дочерних продуктов радона (ДПР) и сопоставление результатов измерений с результатами, полученными с помощью промышленных альфа- спектрометров.
5. Разработка программного средства для определения параметров распределения радиоактивных аэрозолей по размерам и дозы внутреннего облучения человека при ингаляционном поступлении альфа-активных аэрозолей.

**Научная новизна работы**

1. Разработан макет нового устройства для оперативной спектрометрии альфа-активных аэрозолей, состоящий из инерционного разделителя, волокнистого фильтра и кремниевого ионно-имплантированного полупроводникового детектора с коллиматором, работающего при нормальном давлении.

2. Для нового однокаскадного инерционного разделителя получены зависимости эффективности разделения аэрозольных частиц (имитаторов промышленных аэрозолей) на размерные фракции в зависимости от объемной скорости прокачки аэрозоля через разделитель.

3. Обоснован подход к оценке параметров АМАД и СГО, заключающийся в поиске параметров априорного распределения по размерам, соответствующих минимуму функции невязки между расчетными и измеренными значениями активностей для четырех размерных фракций аэрозолей, выделенных инерционным разделителем.

**Практическая значимость работы**

1. Использование устройств, в основе которых лежит предложенный в диссертации метод, позволит существенно снизить среднее время на получение результатов от нескольких суток до нескольких часов за счет исключения из измерительного цикла этапа радиохимической пробоподготовки.

2. Использование разработанного устройства в производственных условиях позволит существенно упростить контроль за нарушениями технологических процессов, приводящих к возникновению аварийных открытых аэрозольных источников ионизирующего излучения.

3. Полученные в работе результаты позволят повысить информативность спектрометрических измерений проб α-излучающих аэрозолей различного дисперсного состава.

**Основные положения, выносимые на защиту**

1. Конструкция устройства для оперативной спектрометрии альфа-активных аэрозолей, состоящего из инерционного разделителя, волокнистого фильтра и полупроводникового спектрометра с кремниевым ионно-имплантированным детектором и коллиматором.

2. Предложенный подход к оценке характеристик дисперсного состава радиоактивных аэрозолей на основе измерений активности размерных фракций, отобранных однокаскадным разделителем при различных скоростях воздушного потока.

3. Разработанное программное средство, позволяющее управлять процессом измерения активности фракций аэрозольных частиц, определением интегральных теоретических и экспериментальных долей активностей параметров распределения активности по размерам аэрозольных частиц,

расчетом доз внутреннего облучения при ингаляционном поступлении радиоактивных аэрозолей в организм.

**Достоверность и обоснованность полученных результатов**

Достоверность представленных в диссертации результатов и выводов определяется совпадением расчетных и экспериментальных данных по осаждению аэрозольных частиц на препятствии, измерениями спектров альфа-излучения аэрозолей известного нуклидного состава и сопоставлениям полученных характеристик природных и техногенных альфа-активных аэрозолей с результатами исследований других авторов.

**Апробация работы**

Основные результаты и положения диссертации представлены на следующих российских и международных конференциях и семинарах: XI Петряновские и II Фуксовские чтения, Москва, 19-21 апреля 2017; XIII Международная научно-практическая конференция «Будущее атомной энергетики - AtomFuture 2017», Обнинск, 27-30 ноября; Международная научно-техническая конференция студентов и аспирантов «Радиоэлектроника, электротехника и энергетика», Москва, 15-16 марта 2018; VII Международная молодежная научная школы-конференция «Современные проблемы физики и технологий», Москва, 16-21 апреля 2018; XI Международная научно-техническая конференция «Безопасность, эффективность и экономика атомной энергетики», Москва, 23-24 мая 2018; III Международная конференция молодых ученых, специалистов, аспирантов и студентов «Инновационные ядерные реакторы малой и сверхмалой мощности», Обнинск, 15-16 мая 2018; II Международная (XV Региональная) научная конференция «Техногенные системы и экологический риск», Обнинск, 19-20 апреля 2018 г.

**Публикации**

По теме диссертации опубликовано 13 печатных работ, в том числе 4 опубликованы в журналах из списка ведущих рецензируемых научных журналов и изданий, утвержденных ВАК РФ и Web of Science.

**Личный вклад автора**

В диссертации представлены результаты исследований, выполненных лично автором. Вклад автора состоит в постановке задач исследования, в разработке и исследовании элементов конструкции устройства; разработке метода оценки характеристик дисперсного состава радиоактивных аэрозолей, создании и апробации алгоритма и программного средства; обработке, анализе, обобщении полученных результатов; подготовке к публикации полученных результатов совместно с соавторами. Все представленные в диссертации результаты были получены лично автором.

**Структура и объем диссертации**

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения, выводов и списка литературы. Работа изложена на 115 страницах печатного текста, содержит 45 рисунков, 9 таблиц. Библиографический список включает 66 источников.

**Содержание работы**

**Во введении** обоснована актуальность проблемы, формулированы цели и задачи диссертационной работы, научная новизна и практическая значимость, изложены основные положения, выносимые на защиту.

**В первой главе** рассмотрены методы исследования характеристик радиоактивных аэрозолей; методы и средства для идентификации нуклидов и определения активности аэрозольных проб; подходы к оценке дозы внутреннего облучения человека от радиоактивных аэрозолей на основе данных об их дисперсном составе.

Для отбора проб радиоактивных аэрозолей и исследования их свойств наибольшее распространение приобрели косвенные методы на основе фильтрации, а также инерционного и диффузионного осаждения на препятствиях. Среди методов и устройств для идентификации нуклидов и определения активности аэрозольных проб, образующихся при эксплуатации ядерной техники, наилучшим энергетическим разрешением обладают полупроводниковые детекторы. Для обнаружения и идентификации альфа-активных нуклидов в полевых условиях при атмосферном давлении наиболее часто используются кремниевые полупроводниковые детекторы со специальными коллиматорами. При оценке ингаляционной дозы от радиоактивных аэрозолей требуется знание их дисперсности, поэтому необходимо использовать средства для оценки величин АМАД и СГО.

Из обзора литературы следует, что, использование известных методов сепарации и измерения аэрозолей позволяет совместить в одном устройстве инерционный разделитель, фильтр, спектрометр с кремниевым полупроводниковым детектором и коллиматором, и как следствие - разработать новый метод оперативной оценки характеристик альфа-излучающих радиоактивных аэрозолей. Оперативность достигается исключением процедуры радиохимической подготовки пробы из измерительного цикла.

**Во второй главе** приведено решение задачи оценки параметров логарифмически нормального распределения (ЛНР) радиоактивных аэрозолей по размерам на основе четырех измеренных фракций и минимизации функции невязки между измеренными и расчетными значениями. Также описана конструкция устройства для оперативной спектрометрии альфа-активных аэрозолей, состоящая из инерционного разделителя, волокнистого фильтра и кремниевого ионно-имплантированного полупроводникового детектора с коллиматором. Кроме того, приведено описание программного средства для

полуавтоматического управления измерениями энергетических спектров альфа-частиц, определения характеристик радиоактивных аэрозолей и дозы внутреннего облучения человека.

Для определения параметров ЛНР используется подход, включающий разделение (сепарацию) аэрозольных частиц, на размерные фракции (группы) путем прокачки газового потока (аэрозоля) через однокаскадный инерционный разделитель при различных величинах расхода. Аэрозольные частицы осаждают на фильтр при фиксированной скорости газового потока и измеряют активность каждой выделенной размерной фракции в течение равных промежутков времени.

В рамках предложенного подхода проводится сравнение значений активности для определения зависимости измеренных значений альфа-активности от размера аэрозольных частиц при многошаговых измерениях. За счет последовательного сравнения величин альфа-активности на каждом шаге измерений с величиной активности, зарегистрированной на предыдущем шаге измерений при предыдущем значении расхода газового потока, выделяется полезный сигнал, характеризующий активность аэрозольных частиц конкретной выделенной размерной фракции. По измеренным абсолютным значениям активности фракций рассчитываются относительные значения активности $\eta_i$, и затем с учетом теоретических значений $\eta_i^T$, вычисляется функция невязки $Q(\mu,\sigma)$. Параметры дисперсного состава - АМАД (μ) и СГО (σ) определяются на основании минимизации $Q(\mu,\sigma)$ методом статистических испытаний. Расчет производится на основании следующих математических зависимостей:

$$\eta_i^T(\mu,\sigma) = \int_0^\infty E_i(x)\cdot f(x,\mu,\sigma)dx\,, \tag{1}$$

$$E_i(x) = \frac{1}{1+e^{-(k_i x+b_i)}}\,, \tag{2}$$

$$f(x,\mu,\sigma) = \frac{1}{x\cdot\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\sigma)}\cdot e^{\frac{-(\ln(x)-\ln(\mu))^2}{2\cdot\ln^2\sigma}}\,, \tag{3}$$

$$Q(\mu,\sigma) = \sqrt{(\eta_1-\eta_1^T)^2+(\eta_2-\eta_2^T)^2+(\eta_3-\eta_3^T)^2+(\eta_4-\eta_4^T)^2}\,, \tag{4}$$

где: $i=1..N$, $N=4$ – порядковый номер фиксированного значения расхода газового потока; $E_i(x)$ – эффективность разделения частиц с аэродинамическим диаметром $x$ при фиксированном значении линейной скорости газового потока; $k_i$ и $b_i$ – параметры, зависящие от конструкции разделителя и расхода (линейной скорости) газового потока; $f(x,\mu,\sigma)$ – плотность ЛНР аэрозольных частиц исходного спектра по размерам (1/м); $\eta_1$, $\eta_2$, $\eta_3$ $\eta_4$ – значения относительной активности, определенные при четырех значениях расхода (линейной скорости) газового потока; $\eta_1^T$, $\eta_2^T$, $\eta_3^T$, $\eta_4^T$ – теоретические значения относительной

активности для размерных фракций аэрозольных частиц, выделенных при четырех значениях расхода (линейной скорости) газового потока.

Уровень достоверности и точности предложенного подхода к определению параметров распределения радиоактивных аэрозолей зависит от возникающих при его реализации инструментальных и теоретических погрешностей. К инструментальным погрешностям относятся погрешности измерения активностей и расхода газового потока, каждая из которых не превышает 5 %. Теоретическая погрешность зависит от формы функции невязки и минимизируется при количестве выделенных размерных фракций аэрозольных частиц не менее четырех. Численное моделирование показало, что при четырех фиксированных значений расхода газового потока, относительная теоретическая ошибка определения АМАД и СГО снижается более, чем в два раза, с 11% до 5%, по сравнению с измерениями, проведенными при двух фиксированных значениях расхода. Общий уровень относительной теоретической погрешности определения АМАД и СГО, составляющий не более 5%, удовлетворяет требованиям оперативного контроля дисперсного состава радиоактивных аэрозолей, содержащих альфа-активные радионуклиды.

Для реализации предложенного метода разработано устройство, позволяющее повысить оперативность определения объемной активности, нуклидного и дисперсного составов и ингаляционной дозы от радиоактивных аэрозолей, содержащих актиниды. За счет исключения радиохимической подготовки проб оперативность возрастает в 2 - 8 раз при объемной активности более 10 ДОА и активности отобранных проб более 1 Бк.

Устройство состоит из последовательно соединенных между собой через магистраль подачи газового потока следующих узлов и блоков (рис. 1): инерционного разделителя аэрозольных частиц (ОИР) 1; камеры детектирования (КД) 2, спектрометра (С) 3, измерителя расхода (Р) 4, насоса (Н) 5 и блока управления и обработки результатов измерений (БУО) 6. В качестве измерителя расхода 4 может использоваться любой измеритель с погрешностью определения объемного газового расхода не более 5% в диапазоне от 5 до 100 л/мин.

Разделитель 1 представляет собой однокаскадный импактор с регулируемым значением эффективного диаметра разделения $d_{50}$, соответствующим величине эффективности разделения (осаждения) $E_i(x)=0,5$. В камере детектирования 2, изображенной на рис. 2, размещен волокнистый фильтр 10 (АФА-РСП-20), лицевая сторона которого обращена к входной полости камеры со стороны входного патрубка 11, а противоположная – к выходной полости камеры со стороны выходного патрубка 12. Во входной полости камеры 2 расположен детектор альфа-излучения – ионно-имплантированный кремниевый полупроводниковый детектор 13 типа ДК-500, с рабочей поверхностью 570 мм$^2$ Толщина чувствительной области детектора – 2,3 мм. Энергетическое

разрешение детектора по линии 5,5 МэВ составляет около 25 кэВ, рабочее напряжение 50 В.

Рис. 1. Общая схема устройства

Рис. 2. Схема камеры детектирования и спектрометра

Сигнал с детектора 13 через предусилитель 14 поступает на вход анализатора (АИ) 15 На рабочей поверхности детектора 13 со стороны фильтра 9 установлен коллиматор 16. Фильтр 9 располагается вплотную к

коллиматору 16. Расстояние между поверхностью фильтра 9 и детектором 13 составляет не более 11 мм. Ячейки пластикового коллиматора 16 образуют каналы, ориентированные вдоль нормали к плоской поверхности детектора 13.

Для реализации метода оперативной оценки характеристик и исследования свойств радиоактивных аэрозолей для обоснования безопасности ОИАЭ предложен алгоритм в среде Visual Basic и разработано специальное программное средство «ALFA_AEROSOL_EXPRESS», позволяющее в полуавтоматическом режиме, измерять энергетический спектр альфа-частиц, определять АМАД и СГО аэрозолей и дозу внутреннего облучения человека при ингаляционном поступлении в соответствии с НРБ-99/2009. Через управляющий интерфейс в программное средство включен модуль «SpDec», для управления процессом измерения энергетического спектра (рис. 3).

Рис. 3. Общий вид интерфейса ПС «ALFA_AEROSOL_EXPRESS» и кнопка запуска модуля «SpDec»

**В третьей главе** представлены результаты экспериментальных исследований, направленных на решение следующих задач: оценка эффективности разделения спектра аэрозольных частиц на размерные фракции с помощью однокаскадного инерционного разделителя; влияние коллимации альфа-частиц на характеристики кремниевого ионно-имплантированного полупроводникового спектрометра, предназначенного для измерения проб радиоактивных аэрозолей при нормальном атмосферном давлении.

Проведены серии спектрометра с помощью ОСАИ, САИ и ДПР; результаты измерений сопоставлены с данными, полученными с помощью

спектрометров, выпускаемых промышленно. Приведены примеры расчета значений АМАД, СГО и дозы внутреннего облучения персонала от альфа-активных аэрозолей с помощью «ALFA_AEROSOL_EXPRESS». Представлена оценка временных затрат на определение ОА, нуклидного и дисперсного составов и ингаляционной дозы альфа-активных аэрозолей.

Характеристики однокаскадного инерционного разделителя исследованы на экспериментальном стенде, размещенном в камере объемом 8 $м^3$ (рис. 4). Полидисперсные аэрозоли NaCl (плотность 2,16 × $10^3$ $кг/м^3$) получали с помощью распылителя 1, размещенного в верхней части камеры.

Аэрозольные частицы NaCl по плотности близки к обычной пыли, наблюдаемой в рабочей зоне промышленных предприятий, в том числе на ОИАЭ. Счетную концентрацию аэрозолей на входе и выходе из разделителя 2 измеряли двумя оптическими счетчиками HandHeld 3016 (3, 4). Для предотвращения отскока частиц на поверхность коллекторной пластины разделителя предварительно наносили вакуумную смазку. Для снижения эффекта седиментации использовали вентилятор 5. Во избежание засорения на входе насоса 6 (VTE 3 «THOMAS») размещали очистной фильтр 7.

Рис. 4. Схема экспериментального стенда

Эффективность осаждения $E(\bar{x})$ вычислялась по формуле:

$$E(\bar{x}) = \frac{C_{вх}(\bar{x}) - C_{вых}(\bar{x})}{C_{вх}(\bar{x})}, \quad (5)$$

где: $C_{вх}$ – средняя счетная концентрация на входе в разделитель, $м^{-3}$; $C_{вых}$ – средняя счетная концентрация на выходе из разделителя, $м^{-3}$ ; $\bar{x}$ – среднее по измерительному каналу счетчика значение аэродинамического диаметра, мкм.

На рис. 5 представлены экспериментальные значения эффективности осаждения аэрозольных частиц в зависимости от аэродинамического диаметра. Из полученных данных следует, что эффективный диаметр разделения $d_{50}$, определенный на основе экспериментальных данных составил: ~ 6,0 мкм для 20 л/мин и ~ 3,9 мкм для 50 л/мин.

Рис. 5. Зависимости эффективности осаждения *E(x)* от размера частицы (аэродинамического диаметра): 1, 2 – аппроксимация данных (МНК), 3, 4 экспериментальные данные при расходе потока 50 и 20 л/мин, соответственно.

С помощью спектрометра, в составе разработанного устройства, исследованы спектры α-излучения, определена эффективность регистрации и рассчитана активность для источника «тип 1П9» (подложка толщиной 1,1 мм, на рабочую поверхность которой (углубление) нанесён слой радиоактивного препарата, защищённый плёнкой окисла металла) и САИ на основе $^{239}Pu$. Эффективность регистрации α-частиц разработанным устройством сравнивали с промышленными α-спектрометром МКС-01А и радиометром УМФ-2000, которыми измеряли те же источники, а энергетическое разрешение устройства сопоставляли с МКС-01А.

В радиометре УМФ-2000 источник располагается практически вплотную к детектору. В разработанном нами устройстве расстояние между источником и детектором составляет около 10 мм, в спектрометре МКС-01А измерения проводили на расстоянии 45 мм от источника.

Показано, что эффективность регистрации α-частиц с помощью спектрометра МКС-01А и экспериментального устройства совпадают в пределах погрешности. Радиометр УМФ-2000 имеет эффективность регистрации на порядок выше, чем у остальных, что обусловлено взаимным расположением источника и детектора.

Рис. 6. Спектр источника «тип 1П9»

Рис. 7. Спектр источника САИ (119 Бк)

На рис. 6 и 7 приведены альфа-спектры источников «тип 1П9» и САИ, соответственно. При измерениях на спектрометре МКС-01А выполнена энергетическая калибровка по альфа-источнику с известным составом, содержащем радионуклиды $^{242}$Pu (4900 кэВ), $^{239}$Pu (5157 кэВ), $^{238}$Pu (5499 кэВ) (вертикальные линии, рис. 6 и 7), а энергетическую калибровку экспериментальной установки проводили по источнику «тип 1П9».

Из рис. 6 и 7 следует, что наиболее четко энергетические линии изотопов плутонии 5157 и 5499 кэВ проявляются для источника «тип 1П9». Для САИ за счет самопоглощения альфа-частиц в материале источника и отсутствия коллиматора энергетические линии сильно уширены, и идентификация радионуклидов $^{239}$Pu и $^{238}$Pu затруднительна. Это связано с тем, что в САИ аэрозольные частицы в фильтре распределены не только по его фронтальной поверхности, но и по глубине фильтра, что приводит к появлению асимметрии и уширению энергетических пиков α-излучения при его регистрации.

В образцовом источнике «тип 1П9» радиоактивное вещество, содержащее изотопы $^{239}$Pu и $^{238}$Pu, сосредоточено в виде небольшого тонкого диска площадь, 1 см$^2$ на металлической подложке, поэтому потери энергии α-частиц при выходе из источника существенно меньше, чем у САИ. Количество импульсов в канале анализатора, соответствующем энергии 5157 кэВ, от источника «тип 1П9» в МКС-01А в 3 больше, чем у разработанного устройства, а для САИ (119 Бк) – в 5 раз.

Для увеличения энергетического разрешения спектрометра с кремниевым ионно-имплантированным полупроводниковым детектором, используемого в составе разработанного устройства, выполнены исследования влияния геометрических параметров коллиматоров с ячейкой квадратной формы на эффективность регистрации альфа-излучения и энергетическое разрешение α-спектров от аэрозолей, предварительно отобранных на фильтр из ультратонких полимерных волокон. Запыленные фильтры не подвергали радиохимической подготовке.

В исследованиях использовали измерительную систему, состоящую из пробоотборного устройства 1, коллиматора 2, α-спектрометра с полупроводниковым кремниевым ионно-имплантированным детектором ДК-500 3, 1024-канального анализатора импульсов 4, управляемого с помощью модуля «SpDec», установленного на компьютере 5 (рис. 8).

Активность нуклидов, задержанных фильтром, измеряли при нормальных условиях (101,3 кПа, 20 °С). Для энергетической калибровки спектрометра использовали фильтр с отобранными ДПР и специальный аэрозольный источник (САИ).

Рис. 8. Схема измерительной системы

Из акрилонитрилбутадиенстирола (ρ = 1000 кг/м$^3$) с помощью технологии 3D-печати изготовлены три варианта коллиматоров для экспресс-спектрометрии (рис. 9, табл. 1). Толщина стенки между ячейками в коллиматорах равна 300 мкм, диаметр коллиматоров 50 - мм.

а) б) в)

Рис. 9. Коллиматоры № 1 (а), № 2 (б) и № 3 (в)

Таблица 1. Параметры коллиматоров

| Номер коллиматора | Сторона ячейки *a*, мм | Высота ячейки *h*, мм |
|---|---|---|
| 1 | 5 | 5 |
| 2 | 5 | 10 |
| 3 | 2,5 | 10 |

На рис. 10 приведена схема расположения в пробоотборном устройстве (1 на рис. 8): источника α-частиц (фильтра) 6, коллиматора 2 и полупроводникового детектора 3. В зависимости от высоты ячейки коллиматора изменяется его расстояние до детектора, при этом общее расстояние от детектора до источника фиксировано и составляет 11 мм.

Рис. 10. Расположение элементов исследования

Для энергетической калибровки спектрометра использовали аэрозоли ДПР, отобранные в бытовом помещении на фильтр АФА-РСП-20. Из-за их невысокой объемной активности (1 – 2 Бк/м3) время отбора пробы составляло 8 ч, а измерения – 5 ч. Калибровку спектрометра проводили по линиям: $^{218}$Po – 6002 кэВ (канал 522), $^{214}$Po – 7686 кэВ, (канал 776) и $^{212}$Po – 8784 кэВ (канал 935) (рис. 11).

Рис. 11. Спектр ДПР: 1 – без коллиматора , 2 – с коллиматором № 2

Из рис. 11 следует, что коллиматор не оказывает существенного влияния на положение линий ДПР в спектре, но улучшает энергетическое разрешение: значение FWHM для $^{214}$Po при использовании коллиматора № 2 составило около 100 кэВ, а без коллиматора - 350 кэВ. При энергетической калибровке (время экспозиции 4 ч) с помощью САИ, содержащего $^{239}$Pu (5,157 МэВ) и $^{238}$Pu (5,499 МэВ), использование коллиматора также существенно улучшает разрешение (рис. 12). Величина FWHM для $^{239}$Pu при использовании коллиматора № 2 составила 135 кэВ, а без него - 470 кэВ.

Рис. 12. Спектр альфа-излучения источников плутония. ОСАИ («тонкий источник») с коллиматором № 2 (1) и без коллиматора (2). САИ с коллиматором № 2 (3) и без коллиматора (4)

Использование коллиматора № 2 при измерении ОСАИ активностью 388 Бк и диаметром активного пятна 67 мм с тем же радионуклидным составом, что и у САИ, также улучшает энергетическое разрешение: значение FWHM для α-пика $^{239}$Pu, измеренного с коллиматором, составляет 119 кэВ, а без коллиматора - 450 кэВ.

Очевидно, что распределение активности по глубине источника влияет на энергетический спектр, что затрудняет идентификацию нуклидов (рис. 12). Центроиды α-пиков спектра САИ сдвинуты влево примерно на 50 каналов (около 300 кэВ) относительно спектра «тонкого источника». Это связано с тем, что самопоглощение в САИ существенно превышает самопоглощение «тонкого источника» Из результатов измерений спектров с коллиматорами следует, что энергетическая калибровка спектрометра с использованием ДПР возможна только при условии тождественности дисперсного состава дочерних продуктов радона и анализируемого аэрозоля. Как правило, размеры аэрозольных частиц ДПР составляют порядка 0,1 мкм, что существенно меньше, чем у частиц-носителей йода и цезия 0,3 – 0,4 мкм и аэрозольных частиц-носителей трансурановых элементов (5 – 6 мкм).

Известно, что наилучшим энергетическим разрешением обладают спектрометры, в которых альфа-частицы проходят путь от источника до чувствительной области детектора в вакууме. Проведено сравнение величины FWHM α-пика $^{239}$Pu, полученной при использовании коллиматора № 2 в разработанной установке, и в α-спектрометре МКС-01А, в котором измерительная камера вакуумируется.

На рис. 13 представлены спектры от САИ (119 Бк), измеренные в вакууме и при нормальных условиях без- и с коллиматором № 2. Энергетическая калибровка выполнена по измерениям в вакууме. Из-за поглощения энергии альфа-частиц спектры, измеренные в воздухе, сдвинуты влево. (Для измерений без коллиматора – в среднем на 100 кэВ, а с коллиматором – на 40 кэВ). Отметим, что измерения в вакууме проводили 2 часа, а в воздухе 4 часа. При этом общее количество импульсов в спектре составляло: в вакууме – 17866, в воздухе без коллиматора – 29262 и с коллиматором № 2 – 2912.

При использовании коллиматора № 2 величина FWHM в воздухе уменьшается с 470 до 130 кэВ за счет отсечения α-частиц, которые вылетают из источника (фильтра) под большим углом к нормали, направленной от поверхности источника к детектору.

Рис. 13. Энергетический спектр САИ (119)

Несмотря на то, что значение FWHM для измерений в воздухе с коллиматором № 2 и в вакууме различаются не более чем в 2 раза, необходимо учитывать, что при использовании коллиматора эффективность регистрации альфа-частиц существенно (почти в 10 раз) снижается. При небольших уровнях объемной активности в воздухе это влияет на времена отбора и измерения. При высоких уровнях объемной активности, например, в аварийных условиях, снижение эффективности регистрации не будет сильно влиять на общее время оценки параметров альфа-активных аэрозолей, и фактор энергетического разрешения будет определяющим.

Наилучшие характеристики спектрометра с точки зрения энергетического разрешения и времени измерения были получены при использовании коллиматора № 2 высотой ($h$) 10 мм и шириной ячейки ($a$) 5 мм.

Используя разработанное устройство и программное средство «ALFA_AEROSOL_EXPRESS», выполнены оперативные оценки АМАД, СГО и дозы внутреннего облучения персонала. Исходные данные для расчетов были получены в реальных производственных условиях. Время отбора пробы – 120 мин, а измерений – 180 мин. Эффективность регистрации альфа-частиц равна 0,01. Относительная ошибка определения активности составляет не более 5 %. Пример представления результатов приведен на рис. 14.

Рис. 14. Оценка АМАД, СГО и дозы внутреннего облучения

Получено, что АМАД (активностный медианный аэродинамический диаметр) аэрозолей $^{241}$Am, $^{239}$Pu, $^{235}$U, $^{238}$Pu составляет от 3,1 до 4,4 мкм, СГО (стандартное геометрическое отклонение) лежит в диапазоне от 1,4 до 1,6. С большой степенью достоверности можно предположить, что указанные радионуклиды содержатся на одних и тех же аэрозольных частицах-носителях, то есть аэрозоли имеют общий источник происхождения (образуются по одному механизму, скорее всего, диспергационному). Этот вывод может быть использован для планирования регламентных работ на предприятиях ядерного топливного цикла.

**Основные выводы**

1. Разработан новый метод оперативной оценки характеристик и исследования свойств альфа-излучающих радиоактивных аэрозолей для целей обоснования безопасности объектов использования атомной энергии, предполагающий сопряжение в одном устройстве элементов инерционного разделителя, волокнистого фильтра и полупроводникового спектрометра с коллиматором, работающего при нормальном атмосферном давлении.

2. Получены экспериментальные зависимости эффективности разделения аэрозольных частиц для однокаскадного инерционного разделителя, используемого для реализации предложенного метода. Зависимости эффективности разделения аэрозольных частиц от аэродинамического диаметра получены с помощью экспериментального стенда – имитатора промышленных аэрозолей.

3. Предложен подход к оценке параметров распределения активности аэрозолей по размерам АМАД и СГО на основе четырех размерных фракций и минимизации функции невязки между экспериментальными и теоретическими данными.

4. Предложен и изготовлен с использованием аддитивных технологий 3-D печати коллиматор для кремниевого ионно-имплантированного спектрометра. Выполненные исследования конструкций коллиматоров могут быть использованы при разработке новых и улучшении уже созданных устройств для спектрометрии альфа-излучающих аэрозолей.

5. Установлено, что измерение активности выделенных размерных фракций частиц происходит непосредственно в камере детектирования устройства, а определение параметров дисперсного состава радиоактивных аэрозолей непосредственно в месте отбора проб.

6. Разработаны алгоритм расчета параметров АМАД, СГО и дозы внутреннего облучения и программное средство для его реализации. Программное средство, позволяет управлять процессом измерения активности фракций аэрозольных частиц, расчетом АМАД, СГО и доз внутреннего облучения.

**Основные публикации по теме диссертации**

1. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка, Д. В. Арон. Влияние коллиматора на характеристики полупроводникового альфа-спектрометра при измерении радиоактивных аэрозолей. – Атомная энергия, 2018, № 2 (125), с. 109 – 112.

2. Y.N. Husein, A.K. Budyka, D.A. Pripachkin, Karev Andrey, Tsovyanov Aleksandr. Estimation method of particle size distribution (PSD) of radioactive aerosols by using inertial separators // В электронной издательской платформе

Knowledge E (серия KnE Materials Science) – KnE Life Sciences, 2017, p. 279 – 287. DOI 10.18502/33.

3. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка. Оценка спектрометрических и радиометрических характеристик альфа-излучающих радионуклидов плутония и их влияние на величину АМАД. – Глобальная ядерная безопасность, 2018, №1 (26), с. 1-7.

4. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка, А.Е. Карев, А.Г. Цовьянов. Метод определения дисперсного состава радиоактивных аэрозолей на основе инерционных разделителей. – Аппаратура и новости радиационных измерений, 2016, № 3 (86), с. 57 – 63.

5. Y.N. Husein, A.K. Budyka, D.A. Pripachkin. A new method for studying the dispersed composition of radioactive aerosols from research reactors. В сб.: Тезисы докладов III Международной конференции молодых ученых, специалистов, аспирантов и студентов «Инновационные ядерные реакторы малой и сверхмалой мощности». – Обнинск: ИАТЭ НИЯУ МИФИ, 2018, с. 7.

6. Y.N. Husein, A.K. Budyka, D.A. Pripachkin. Estimation method of particle size distribution (PSD) of radioactive aerosols by using inertial separators. – В сб.: Тезисы докладов XIII Международной научно-практической конференции «Будущее атомной энергетики - AtomFuture 2017». – Обнинск: ИАТЭ НИЯУ МИФИ, 2017, с. 223.

7. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка. Оценка дисперсного состава радиоактивных аэрозолей методом минимизации функции ошибки. – В сб.: Тезисы докладов VII Международной молодежной научной школа-конференции «Современные проблемы физики и технологий». – М.: НИЯУМИФИ, 2018, с. 325.

8. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка. Оценка активности и характеристики дисперсного состава аэрозолей плутония с помощью экспериментальной установки. – В сб.: Тезисы докладов конференции «XI Петряновские и II Фуксовские чтения». – М.: НИФХИ им. Л.Я. Карпова, 2017, с. 150.

9. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка. Использование новой экспериментальной установки для определения объемной активности и АМАД α-активных радионуклидов. – В сб.: Тезисы докладов VII Международной молодежной научной школа-конференции «Современные проблемы физики и технологий». – М.: НИЯУМИФИ, 2018, с. 323.

10. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка. Оценка активности и характеристик дисперсного состава аэрозолей плутония с помощью экспериментальной установки. – В сб.: Тезисы докладов II Международной (XV Региональной) научной конференции «Техногенные системы и экологический риск». – Обнинск: ИАТЭ НИЯУ МИФИ, 2018, с. 160.

11. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка. Использование однокаскадного инерционного разделителя для оценки дисперсного состава

радиоактивных аэрозолей. – В сб.: Тезисы докладов II Международной (XV Региональной) научной конференции «Техногенные системы и экологический риск». – Обнинск: ИАТЭ НИЯУ МИФИ, 2018, с. 71.

12. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка. Оценки АМАД α-активных радионуклидов и объемной активности с помощью новой экспериментальной установки. – В сб.: Тезисы докладов XI Межд. н.-т. конф. «Безопасность, эффективность и экономика атомной энергетики». – М.: ОАО «ВНИИАЭС», 2018, (http://mntk.rosenergoatom.ru).

13. Ю.Н. Хусейн, Д.А. Припачкин, А.К. Будыка. Оценки дисперсного состава радиоактивных аэрозолей с использованием однокаскадного инерционного разделителя. – В сб.: Тезисы докладов XI Межд. н.-т. конф. «Безопасность, эффективность и экономика атомной энергетики». – М.: ОАО «ВНИИАЭС», 2018, (http://mntk.rosenergoatom.ru).

14. Y.N. Husein, A.K. Budyka, D.A. Pripachkin. Estimation method of particle size distribution (PSD) of radioactive aerosols by using inertial separators. – В сб.: Тезисы докладов XXIV Международной научной-техн. конференции студентов и аспирантов «Радиоэлектроника, электротехника и энергетика». – М.: НИУ МЭИ, 2018, с. 745.

26

Подписано в печать: 04.12.2018
Заказ № 12546 Тираж - 75 экз.
Бумага офсетная. Формат 60x90/16.
Типография «11-й ФОРМАТ»
ИНН 7726330900
115230, Москва, Варшавское ш., 36
(977) 518-13-77 (499) 788-78-56
www.autoreferat.ru riso@mail.ru