

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ УГЛЕВОЛОКНИСТЫХ СОРБЕНТОВ В ГАММА-РАДИОМЕТРИИ РАДОНА

О.М. Анишаков, А.О. Киш, Т.В. Крюковская, Р.В. Лукашевич, С.В. Матвейчук, И.И. Уголев, В.А. Чудаков

Представлены результаты экспериментальных исследований закономерностей сорбции радона-222 в воздушно-радоновой смеси углеволокнистыми материалами. Исследованы следующие материалы: сорбент углеродный медицинский типа АУТ-М и материал углеволокнистый сорбционно-фильтрующий типа Бусофит. Получены экспериментальные данные о зависимости коэффициентов сорбции радона данными материалами от температуры и влажности воздуха. Определены временные параметры пассивного пробоотбора. Выявленные закономерности позволяют сделать вывод о целесообразности и перспективности применения в гамма-радиометрии радона рассмотренных углеволокнистых материалов.

Введение

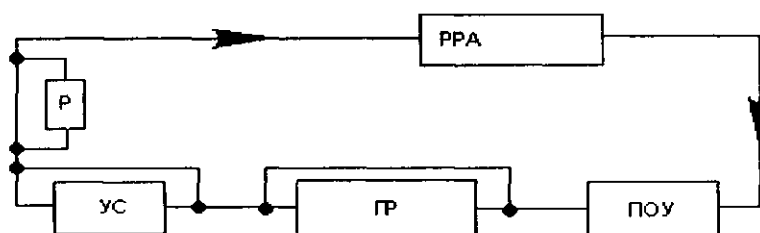
В мировой практике радонового мониторинга широкое распространение получил метод избирательной гамма-радиометрии равновесных дочерних изотопов Pb-214, Bi-214, накапливаемых при поглощении одноатомного газа радона-222 (Rn-222) в специальных коллекторах-адсорберах с активированным углем [1, 2]. Применение данного метода позволяет значительно упростить связанный с большим объемом рутинных измерений процесс реализации радонового мониторинга при радиационно-гигиеническом контроле зданий и строений.

В методиках [3, 4] вместо традиционных активированных углей предлагается использовать современные углеволокнистые сорбенты типа АУТ-М и БУСОФИТ производства РУП «СПО Химволокно». Эти материалы выпускаются в различной текстильной форме, способны к многократной регенерации путем нагрева без потери сорбционной емкости и превосходят традиционные активированные угли по основным параметрам назначения. Высокие сорбционные и эксплуатационные свойства делают углеводные волокна перспективными для адсорберов активного и пассивного пробоотбора.

Экспериментальная часть

В целях корректной реализации гамма-радиометрической методики с использованием углеволокнистых сорбентов [5] были проведены экспериментальные исследования сорбционных характеристик материалов АУТ-М и Бусофит в отношении радона-222.

Определение коэффициентов сорбции радона в зависимости от температуры окружающей среды проводились в ИФОХ НАН Б на циркуляционной лабораторной установке, собранной по принятой [6] схеме, показанной на рис. 1.



РРА – альфа-радиометр радона РРА-01М-03; ПОУ – пробоотборное устройство ПОУ-04;
ГР - генератор радона; УС – устройство сорбции, Р – ресивер (дополнительный объем)

Рисунок 1 – Схема экспериментальной установки

Опыты по сорбции проводили при двух объемах газовой системы: 1,9 дм³ и 12,5 дм³, в зависимости от подключения ресивера Р. В качестве источников радона использовались твердотельные генераторы на основе оксида алюминия и на основе волокна типа ФИБАН [7]. Циркуляционная прокачка воздуха через систему осуществлялась при помощи пробоотборного устройства ПОУ-04 с объемной скоростью 1 дм³/мин. Направление потоков регулировались газовыми кранами. Предварительно воздух через генератор прокачивался в течение 3-5 мин при выключенном из цепи устройстве сорбции; для этой цели в системе предусмотрена возможность его пассивного обхода. Затем устройство сорбции включалось в цепь, и система непрерывно прокачивалась с выключенным генератором до установления в ней равновесной концентрации радона. Далее воздушно-радоновая смесь направлялась в устройство сорбции с навеской исследуемого углеродного волокна. Активность циркулирующего в системе радона контролировалась при помощи альфа-радиометра РРА-01М-03. Температуру газовой среды в системе регулировали водяным термостатом, в который помещали устройство сорбции.

Сорбция радона-222 углеродными волокнами представляет собой частный случай распределения радиоактивных элементов между газообразной и твердой средами [6]. Поведение радона подчиняется общему закону распределения микропримеси между двумя фазами, поэтому изучение сорбционных свойств углеродного волокна по радону сводится к определению коэффициентов сорбции (коэффициентов Генри).

Коэффициенты сорбции вычислялись по формуле

$$k_c = \frac{V}{m} \left(\frac{C_{исх}}{C_{равн}} - 1 \right), \quad (1)$$

где k_c – коэффициент сорбции, дм³/г; $C_{исх}$ – исходная активность радона; $C_{равн}$ – равновесная активность радона; V – объем системы, дм³; m – масса сорбента, г.

Основные результаты температурной зависимости коэффициента сорбции радона на исследованных материалах представлены в таблицах 1, 2, 3. Полученные экспериментальным путем данные удовлетворительно аппроксимируются прямыми линиями, что позволяет рассчитать величину дифференциальной теплоты сорбции (ΔE_c) из воздуха:

$$\Delta E_c = \left| -\frac{1}{KT} \cdot \ln \frac{k_c}{k_0} \right|, \quad (2)$$

где K – постоянная Больцмана, T – абсолютная температура, k_0 – постоянный коэффициент, связанный с тепловым движением частиц поверхности.

Таблица 1 - Сорбция радона нетканым углеродным волокном

Масса образца, г	Температура, °С	k_c , дм ³ /г	Объем системы, дм ³	ΔE_c , кДж/моль
1,8	12	4,1	12,5	29,30
1,8	16	2,7	12,5	
1,8	25	2,4	12,5	

Таблица 2 - Сорбция радона углеродным волокном типа АУТ-М3

Масса образца, г	Температура, °С	k_c , дм ³ /г	Объем системы, дм ³	ΔE_c , кДж/моль
1,2	16	3,0	1,9	34,70
1,8	17	3,2	1,9	
2,0	17	3,8	12,5	
2,0	30	2,1	12,5	

Таблица 3 - Сорбция радона углеродным волокном типа Бусофит

Масса образца, г	Температура, °С	K_c , $\text{дм}^3/\text{г}$	Объем системы, дм^3	ΔE_c , кДж/моль
1,8	14	13,10	1,9	28,05
1,8	15	14,50	12,5	
1,8	16	14,30	12,5	
1,8	20	10,10	1,9	
1,8	50	4,15	12,5	

бусофит

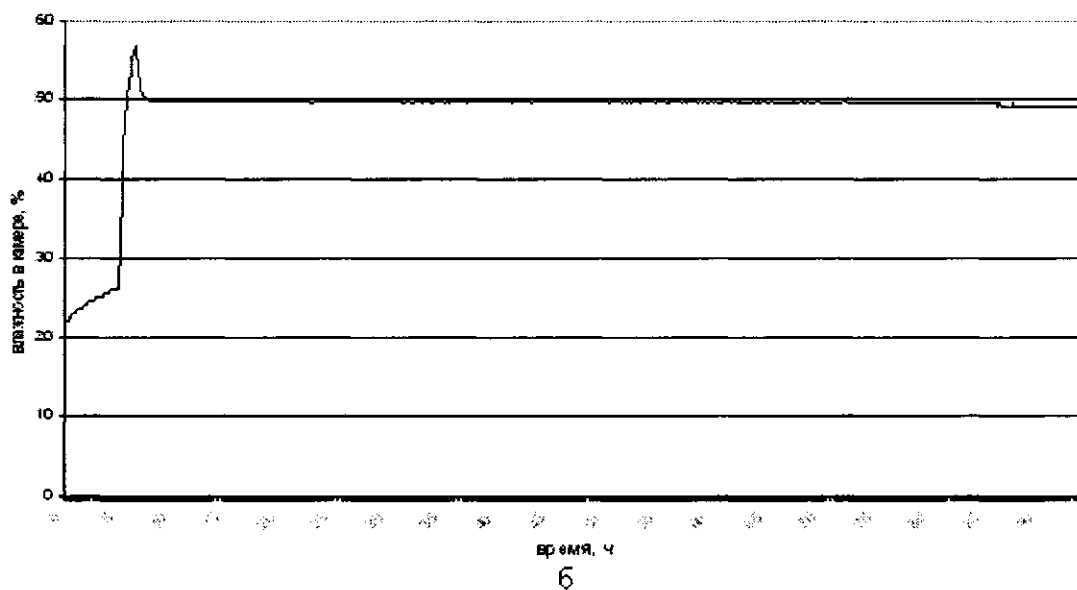
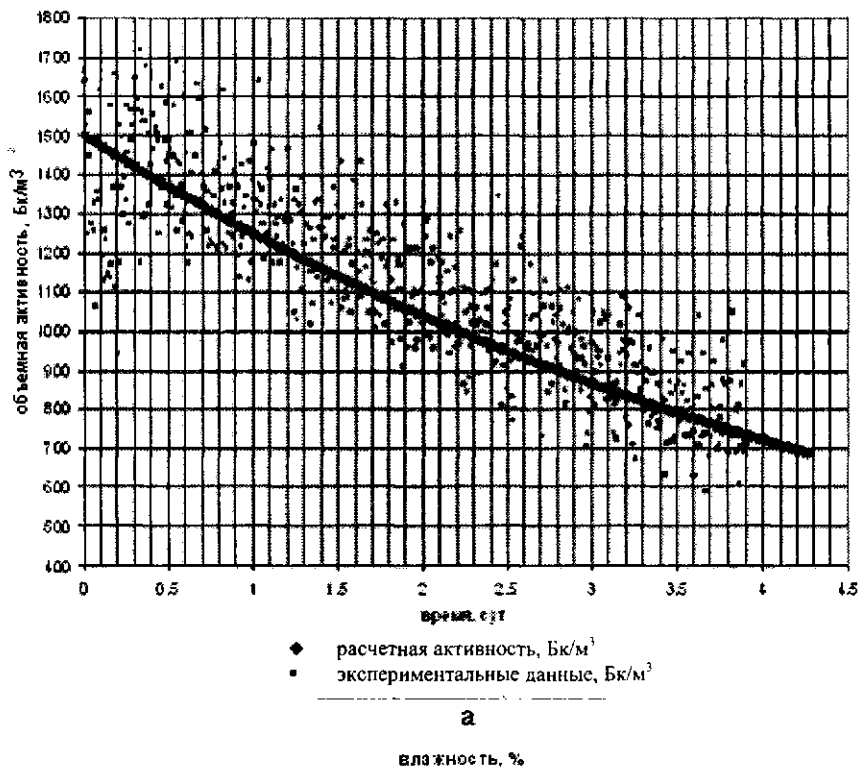
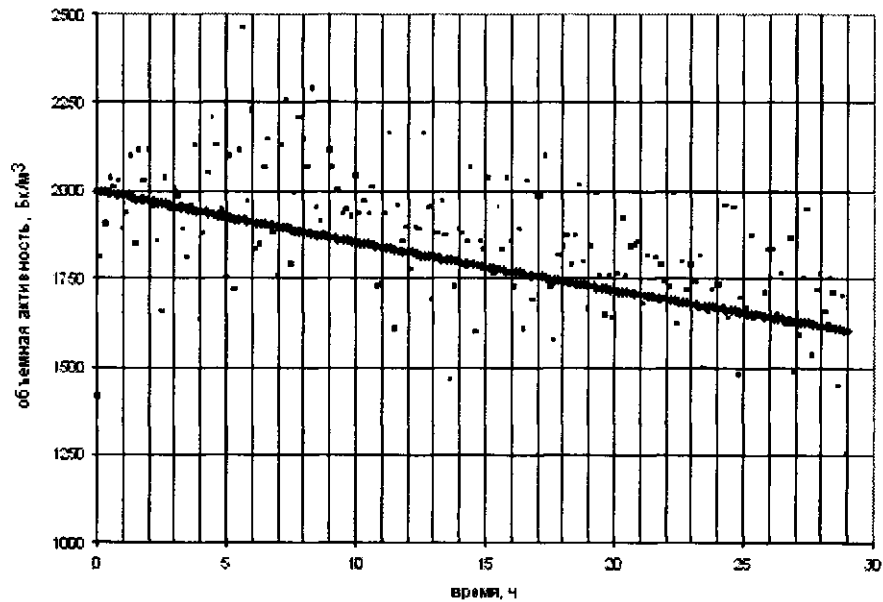


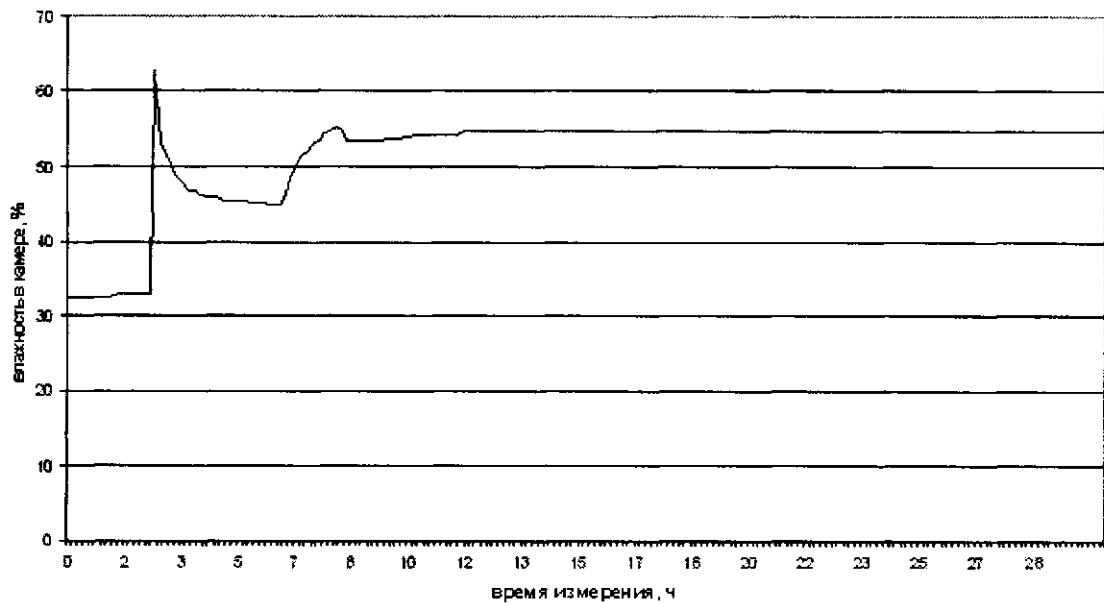
Рисунок 2 – Кинетика сорбции радона в камере для материала «Бусофит» (а) и изменение влажности в радоновой камере в процессе опыта (б)

АУТ-М



а

влажность, %



б

Рисунок 3 – Кинетика сорбции радона в камере для материала АУТ-М (а) и изменение влажности в радоновой камере в процессе опыта (б)

Теплота сорбции радона из воздуха на исследованных типах углеродного волокна в пределах погрешностей измерений и расчета ($\pm 20\%$; 0,95) согласуется с литературными данными [2], полученными для активированных углей типов СКТ и ПАУ.

Следует отметить, что в нашем случае углеволокнистые материалы исследовались в динамическом режиме сорбции, поэтому коэффициенты сорбции для волокна типа АУТ-М и нетканого материала занижены примерно вдвое по сравнению с данными, полученными в экспериментах по изучению пассивной сорбции (статический режим) [8]. При этом общий ход температурной зависимости коэффициентов сорбции 35 – 40 % на 10 °С совпадает с

литературными данными [6, 9].

Исследования влияния атмосферной влажности на коэффициенты сорбции радона углеродным волокном АУТ-МЗ и Бусофит были проведены на базе радоновой камеры БелГИМ объемом 0,142 м³ [10]. Образец углеродного волокнистого материала после регенерации взвешивали и помещали в радоновую камеру с определенной влажностью. Радон в камеру подавали из генератора радона, который прокачивали воздухом в течение 10 минут. После этого, для установления сорбционного равновесия, образец выдерживали в камере не менее 5 часов. Кинетику сорбции радона контролировали радиометром радона AlphaGuard PQ2000 (Genitron Instruments, Германия), снимая показания через каждые 10 минут. Далее барботажным способом повышали влажность в радоновой камере до 50 %, образец в этих условиях выдерживали в течение 3-х суток. Изменение активности радона в камере показано на рисунках 2(а,б) и 3(а,б).

Статистический анализ результатов измерения (рис. 2,3) показывает, что временной спад среднего значения объемной активности радона в камере соответствует его естественной убыли за счет радиоактивного распада. Это означает, что наблюдаемые коэффициенты сорбции исследуемых материалов практически не зависят от влажности воздуха в диапазоне от 20 % до 50 %.

Экспериментальные исследования временных характеристик пассивного пробоотбора проводились в подвальных и цокольных помещениях МГЭУ им. А.Д.Сахарова и БГУ. В исследованиях использовались адсорберы с различным типом углеродного волокна, сконструированные в геометрии измерительных сосудов «Маринелли» для измерения активности поглощенного радона при помощи сцинтилляционного гамма-радиометра РКГ-АТ1320.

Подготовка к исследованиям заключалась в градуировке радиометров и регенерации адсорберов. Градуировка выполнялась на комплектах объемных мер активности специального назначения (МАСН) с известным содержанием радионуклида Ra-226 и его равновесных продуктов распада: Rn-222, Pb-214 и Bi-214, изготовленных на основе образцов углеродного волокна АУТ-М, пропитанных растворами радия-226 различной активности и герметично упакованных в штатные измерительные контейнеры радиометра – сосуды Маринелли.

Регенерацию адсорберов проводили нагреванием в сушильном шкафу при температуре 150° в течение 2-3 ч. По окончании этого процесса и остывании в эксикаторе адсорберы подвергались герметизации в штатной измерительной кювете с последующей проверкой качества регенерации на радиометре в фоновом режиме.

На этапе пробоотбора адсорберы выдерживались в воздухе помещений с максимальным интегральным временем экспозиции до 14 суток. Периодически адсорберы изымались для измерения активности радона-222, накопленного за время экспозиции. Параллельно объемная активность радона-222 в воздухе обследуемых помещений измерялась при помощи альфа-радиометров AlphaGuard и PPA-01M-03.

Среднее значение объемной активности (ОА) радона в воздухе за время пробоотбора рассчитывалось по формуле

$$Q_{Rn} = \frac{A_c \cdot e^{-\lambda t}}{k_v}, \quad (3)$$

где A_c – активность сорбированного радона по показаниям радиометра; λ – постоянная распада радона; t – интервал времени от окончания пробоотбора до начала радиометрических измерений; k_v – объемный эквивалент сорбента при пассивном пробоотборе.

Величина объемного эквивалента зависит от конструкции адсорбера, его основных размеров, типа используемого углеродного волокна и продолжительности экспонирования. Реальные значения k_v определены в результате лабораторных исследований с помощью

формулы

$$k_v = m_c \cdot k_c, \text{ м}^3, \quad (4)$$

где m_c – масса сорбента, г; k_c – коэффициент сорбции, м³/г.

Типичный график зависимости ОА Rn-222 в воздухе помещения от времени экспозиции адсорбера представлен на рисунке 4. Ряды 1 и 2 соответствуют адсорберам с углеродным волокном типа АУТ-М массами 115 г и 230 г соответственно, выполненным из стальной сетки, а ряд 3 – перфорированному металлическому адсорберу с углеродным волокном типа “Бусофит” массой 229 г. Ряд 4 представляет данные, полученные экспресс-методом с помощью альфа-радиометра AlphaGuard.

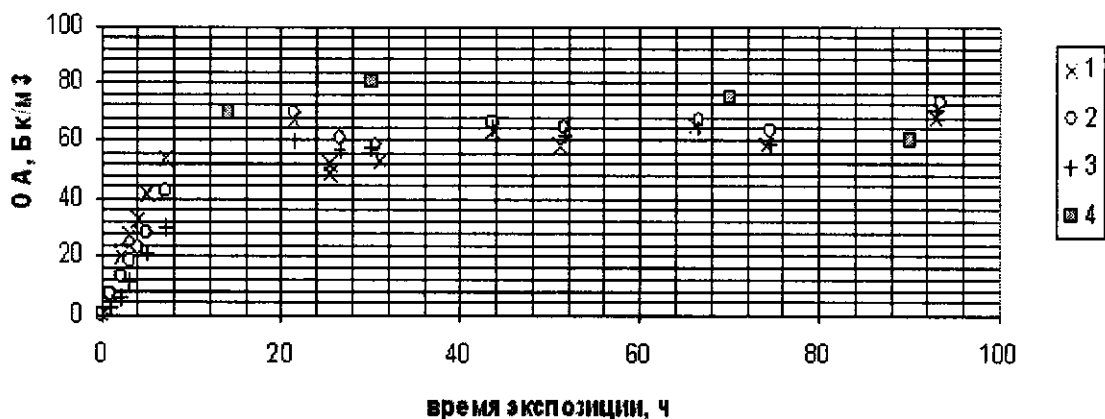


Рисунок 4 – Зависимость результата измерения объемной активности радона в воздухе от времени экспозиции адсорбера

Из графика видно, что время экспозиции адсорберов до достижения равновесного содержания радона составляет около одних суток.

Значение постоянной времени можно рассчитать из оценки:

$$Q_{Rn} = Q_0(1 - e^{-\lambda_s t_s}), \quad (5)$$

где Q_{Rn} – значение объемной активности, рассчитанное по формуле (4), Бк/м³; Q_0 – значение ОА, полученное методом альфа-радиометрии, Бк/м³; t_s – время экспозиции адсорбера, ч.

Для углеродного волокна типа АУТ-МЗ λ_s составляет 0,16 ч⁻¹.

Полученные данные о постоянной времени исследованных адсорберов свидетельствуют о меньшей их инерционности по сравнению с обычно используемыми в аналогичных целях адсорберах с активированными углями различных типов. Так, адсорберы типа СК-13 с углем СКТ-3С ($k_v = 0,02 \text{ м}^3$; $m_c = 7 \text{ г}$) обладают временем экспозиции до равновесного состояния 4 сут ($\lambda_s = 0,01 \text{ ч}^{-1}$) [11], как и адсорберы EPA USA ($k_v = 0,34 \text{ м}^3$; $m_c = 70 \text{ г}$; λ_s составляет 0,046 ч⁻¹) [12].

Заключение

Проведенные экспериментальные исследования свидетельствуют о целесообразности использования в радиометрии радона современных углеволокнистых материалов АУТ-М и БУСОФИТ, которые по своим эксплуатационным и сорбционным свойствам превосходят традиционно используемые в указанных целях материалы.

Литература

1. George, A.C. An overview of instrumentation for measuring environmental Rn and radon progeny/ A.C. George // IEEE. – Trans. Nucl. Sci. – 1990. – Vol.37, №2. – P.892–901.

2. Цапалов, А.А. Мониторинг района с использованием активированного угля / А.А. Цапалов // АНРИ.– 1994.– №1.– С.40–43.
3. Аншаков, О.М. Гамма-радиометрия района в почвенном воздухе с использованием волокнистых сорбентов / О.М. Аншаков [и др.] // Актуальные проблемы дозиметрии: материалы 5-го междунар. симпозиума, Минск, 20–21 окт.2005 г. / Междунар. гос. экол. ун-т им. А.Д. Сахарова; редкол.: С.П. Кундас [и др.]. - Минск, 2005. – С.276–279.
4. Аншаков, О.М. Методика пробоотбора атмосферного воздуха для измерения объёмной активности радона-222 / О.М. Аншаков [и др.] // Актуальные проблемы дозиметрии: материалы 5-го междунар. симпозиума, Минск, 20–21 окт.2005 г. / Межд. гос. экол. ун-т им. А.Д. Сахарова; редкол.: С.П. Кундас [и др.]. Минск, 2005. – С. 273–276.
5. Методика выполнения измерений активности радона-222 в воздухе помещений на сцинтилляционных гамма-радиометрах // МВИ. МН2526. –2006.
6. Казанкин, Ю.Н., Трофимов А.М., Михайлова Л.К. Адсорбция радона на современных активированных углях / Ю.Н. Казанкин, А.М. Трофимов, Л.К. Михайлова // Радиохимия.– 1978. – № 3. – С.426-430.
7. Сорока, С.А. Образцовые меры для поверки средств измерения объёмной активности радона в воздухе / С.А. Сорока, И.И. Уголев, В.А. Чудаков. // Сахаровские чтения 2005 года: Экологические проблемы XXI века: материалы междунар. науч. конф., Минск, 18–19 мая 2005 г. / Междунар. гос. экол. ун-т им. А.Д. Сахарова; редкол. С.П. Кундас [и др.].– Минск, 2005. – С. 99–100.
8. Аншаков О.М. Временные параметры сорбции радона-222 из атмосферного воздуха адсорберами с углеволоконистыми материалами / Аншаков, О.М. [и др.] // Сахаровские чтения 2006 года: Экологические проблемы XXI века: материалы междунар. науч. конф., Минск, 18–19 мая 2006 г. / Междунар. гос. экол. ун-т им. А.Д. Сахарова; редкол. С.П. Кундас [и др.]. – Минск, 2006. – С. 12–14.
9. Грошковский, Я.С. Техника высокого вакуума / Я.С. Грошковский. – М.: Мир, 1975. – 318 с.
10. Чудаков, В.А. Принципы построения эталонных радоновых камер / В.А. Чудаков [и др.] // АНРИ. – 2006. – №1. – С.34–38.
11. Методика измерений средней за время экспозиции объёмной активности радона в воздухе жилых и служебных помещений // Научно-технический центр “Нитон”. – Москва. – 1993.
12. George, A.C. An overview of instrumentation for measuring environmental Rn and radon progeny / A.C. George. // IEEE. – Trans. Nucl. Sci. – 1990. – Vol.37, №2. – P.892–901.

Поступила в редакцию 10.04.2007