

Измерение аэродисперсного йода-131 в рамках комплекса "ПРОГРЕСС" с использованием угольных адсорберов

Антропов С.Ю., Ермилов А.П., Ермилов С.А., Комаров Н.А., Цапалов А.А.

При утечке из реактора радиоiod распространяется по воздуху, и измерения его активности в воздухе помещений АЭС и за их пределами имеют большое значение для обеспечения радиационной безопасности персонала АЭС и населения. Измерения активности радиоiodа в аварийных выбросах ЧАЭС показали, что на обычных аэрозольных фильтрах - отечественных типа АФА и применяемых за рубежом целлюлозных - при прокачке воздуха сорбировалось лишь (15÷30)% активности аэродисперсного йода. Причиной было наличие в выбросах физико-химических форм йода, которые не сорбируются на этих фильтрующих материалах - молекулярных паров йода (I_2), соединений типа йодметила (CH_3I) и т. д. Эти свойства аэродисперсного йода хорошо известны, и в свое время, задолго до чернобыльской катастрофы, в НИФХИ им. Л.Я.Карпова были разработаны специальные фильтрующие материалы, улавливающие все формы йода - фильтрующая лента АФА с наполнением активированным углем, фильтры на основе азотнокислого серебра и т. д. Тем не менее, в нужный момент под рукой их не оказалось. Причина очевидна - материалы эти специфичны именно к радиоiodу и при проведении, скажем, в системе санэпиднадзора обычных рутинных измерений надобности в них нет, а если постоянной необходимости в какой-либо вещи нет, то она оказывается спрятанной так далеко, что в нужный момент ее не найдешь, даже если она и имеется.

Исходя из этих предпосылок, была сформулирована задача - найти среди постоянно используемого инструментария материалы и методы, которым может быть придана дополнительная функция улавливания и измерения активности всех аэродисперсных форм радиоiodа.

Думать здесь особенно было не над чем - с одной стороны, улавливание всех аэродисперсных форм радиоiodа сорбентами на основе активированного угля - вещь известная, с другой стороны, в настоящее время в практике рутинных измерений концентрации радона-222, проводимыми органами санэпиднадзора, широкое применение нашли измерения, основанные на использовании адсорберов с наполнением активированным углем [1]. Таким образом, нам оставалось лишь найти источник "неуловимых" аэродисперсных форм йода и определить эффективность их улавливания стандартными "радоновыми" угольными адсорберами.

В качестве источника йода-131 был выбран большеобъемный воздухоочистительный фильтр на основе материала ФПП, установленный для очистки сбросного воздуха из технологических боксов одной из лабораторий института Биофизики Минздрава РФ. Анализ нуклидного состава и измерения активности проводились на ППД и сцинтилляционном гамма-спектрометрах ЦМИИ ГП "ВНИИФТРИ".

Испытаниям подвергались стандартные угольные адсорберы, заполненные активированным углем марки СКТ-ЗС, разработанные НТЦ "Нитон", применяемые для

различных способов измерения радона, в том числе и путем "активного" отбора радона из воздуха [1].

Схема пробоотбора приведена на рис. 1.

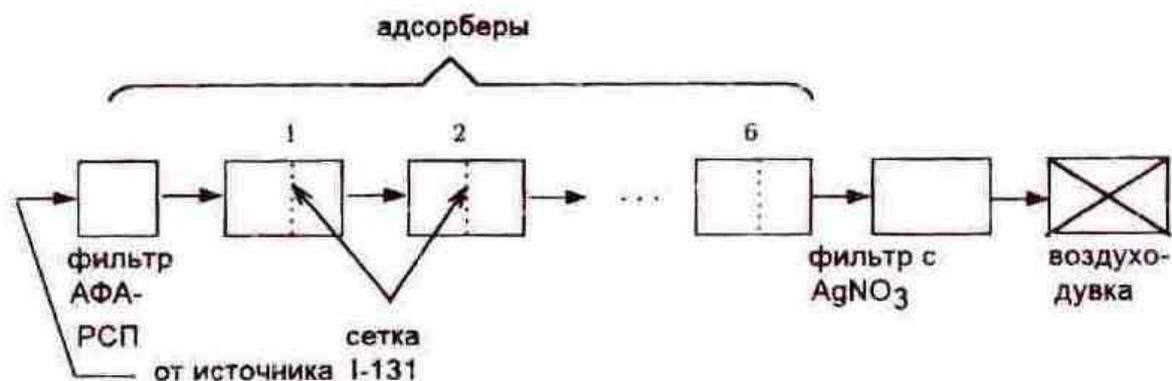


Рис.1. Схема опыта по отбору йода-131 на сорбционную колонку.

Пробоотбор проводился с использованием воздушодувок производительностью 2 и 10 л/мин. при продолжительности прокачки 15 и 40 мин. и производительностью 20 л/мин. по 10, 20, 40, и 60 мин. В каждом опыте сорбционная колонка состояла из шести последовательно соединенных адсорберов, причем при скорости прокачки 20 л/мин. активированный уголь в адсорберах, расположенных в "голове" колонки, секционировался по ходу струи на две части сеточкой, располагавшейся поперек адсорбера в его середине.

Радионуклидный состав осадка был измерен по одному из адсорберов на ППД гамма-спектрометре. При этом из техногенных р/н, кроме йода-131, в пределах погрешности измерений ничего обнаружено не было. Активность йода-131 в экспонированных адсорберах и их частях в дальнейшем была измерена на сцинтилляционном гамма-спектрометре NaI(Tl) 63x63 по стандартному йодному алгоритму, изложенному в предыдущей статье.

Во всех опытах при измерении активности йода-131 на фильтрах, установленных по ходу струи до и после сорбционной колонки, были получены значения, статистически неразличимые с собственным фоном сцинтилляционного спектрометра.

По окончании измерений активности сорбент из адсорбера, содержавшего наибольшую активность йода-131, был подвергнут стандартной "радоновой" регенерации (выдерживание при температуре $160 \pm 20^\circ\text{C}$ в течение 60 мин.). Изменение активности йода-131 до и после регенерации сорбента в пределах погрешности следовало радиоактивному распаду йода-131.

Количественные соотношения между основными величинами, определяющими сорбцию йода, были получены по результатам измерений секционированных адсорберов на основе следующих соображений.

Сорбент марки СКТ-3С состоит из цилиндрических гранул активированного угля диаметром $2 \times 2,5$ мм и длиной 1×6 мм. Во время пробоотбора сорбент располагается в

цилиндрической капсуле адсорбера с размером $\varnothing 20 \times 50$ мм. Масса угля в одном адсорбере - 6,7 г, общее количество гранул (при средней длине гранулы 3,7 мм) ~740 штук, а их общая поверхность, омываемая прокачиваемым воздухом ~250 см². Исходя из этого, можно рассматривать уголь в сорбционной колонке (см. рис.2) как изотропную пористую среду, практически не оказывающую сопротивления при прокачке через нее воздуха.

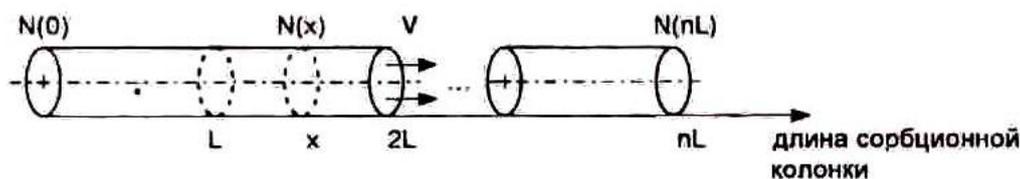


Рис.2. Схематическое изображение колонки из n адсорберов .

L - длина, S - площадь поперечного сечения адсорбера, V - линейная скорость прокачки воздуха, $N(x)$ - концентрация йода-131 в сечении, отстоящем на расстояние x от начала колонки.

Для схемы рис. 2 скорость сорбции йода на уголь из соответствующей порции воздуха:

$$\frac{dN(x)}{dt} = -k \cdot N(x) \quad (1)$$

где k - относительный коэффициент сорбции йода на поверхность угольных гранул.

При прокачке воздуха с линейной скоростью $V = \frac{dx}{dt}$ из (1) получаем:

$$\frac{dN(x)}{N(x)} = -\frac{k dx}{V}$$

Поскольку $V = \frac{B}{S}$ (B - объемная скорость прокачки),

$$\frac{dN(x)}{N(x)} = -\frac{kS}{B} \cdot dx. \quad (2)$$

Интегрируя уравнение (2), получаем зависимость концентрации йода в воздухе по длине сорбционной колонки от скорости прокачки:

$$N(x) = N(0) \cdot \exp\left(-\frac{kSx}{B}\right)$$

или для удельной активности йода в прокачиваемом через адсорбер воздухе:

$$Q(x) = Q(0) \cdot \exp\left(-\frac{kSx}{B}\right) \quad (3)$$

Введем $a = kSL$ - коэффициент объемной сорбции, n - число последовательно соединенных адсорберов в сорбционной колонке, тогда удельная активность йода-131 в воздухе, прошедшем через колонку из n адсорберов с объемной скоростью B , составляет:

$$Q(n) = Q(0) \cdot \exp\left(-\frac{an}{B}\right) \quad (4)$$

Активность йода-131, сорбированного в колонке при времени прокачки " t ":

$$q(t) = Q(0) \cdot (1 - \exp(-\frac{an}{B})) \cdot V \cdot t \quad (5)$$

Относительная эффективность пробоотбора:

$$\varepsilon = 1 - \exp(-\frac{an}{B}) \quad (6)$$

Измерения активности йода-131 в адсорберах, экспонированных со скоростью $V=20$ л/мин. при времени пробоотбора $t=10; 20$ и 40 мин., показали, что значение коэффициента объемной сорбции не зависит от времени прокачки и составляет:

$$a=(1440 \pm 150) \text{ см}^3/\text{с}$$

В табл. 1 приведены значения относительной эффективности пробоотбора летучих форм йода для одного адсорбера и колонки из двух адсорберов, измеренные при скорости $V=20$ л/мин. и рассчитанные по формуле (6) для $V=100$ л/мин.

Таблица 1.

n \ B	B	20	100
	1		0,98
2		0,99	0,79

Из соотношения (5) получаем формулу для расчёта удельной активности йода-131 в воздухе по значению активности сорбента на момент окончания прокачки:

$$Q = \frac{q(t)}{B \cdot t \cdot \varepsilon}$$

Теперь соотнесём с нормативными величинами возможности пробоотбора йода-131 на угольные адсорберы в сочетании с измерительными возможностями, заложенными в комплексе "Прогресс".

Так, согласно действующих ОСП, допустимая удельная активность йода-131 в рабочих помещениях категории А ($ДК_A$) составляет $4,2 \cdot 10^{12}$ Ки/л = 0,16 Бк/л.

При измерении активности йода-131 в сорбенте на сцинтилляционном гамма-спектрометре NaI(Tl) 63x63 в геометрии "пластмассовая чашка Петри" значение МДА за полчаса измерений - (2ч3) Бк. Таким образом, для ответа на уровне 0,5 ($ДК_A$) через адсорбер необходимо прокачать всего лишь ~ (20ч30) л воздуха.

По результатам измерений можно сделать следующие выводы.

Отсутствие активности йода-131 на "лобовом" фильтре АФА РСП свидетельствует о том, что в прокачиваемом воздухе могли быть лишь "летучие" формы йода.

Отсутствие йода-131 на окончательном фильтре из азотнокислого серебра свидетельствует, что все "летучие" формы йода улавливаются в адсорберах.

"Стандартная" процедура регенерации сорбента не очищает уголь от йода. Для повторного использования сорбента необходимо или вычитать "фоновую" активность радиойода в сорбенте, или дожидаться распада йода-131. На практике, по-видимому, следует использовать и то, и другое.

Чувствительность измерения активности йода-131 на сцинтилляционном гамма-спектрометре комплекса "Прогресс" с пробоотбором "летучих" форм йода-131 на угольных адсорберах вполне удовлетворяет уровню практических задач.

В заключение осталось выполнить весьма приятную для нас обязанность - поблагодарить Ю.И. Гаврилина за организацию пробоотбора. Без его содействия и участия вряд ли удалось бы выполнить эту работу.

Литература:

1. А.А. Цапалов. Мониторинг радона с использованием активированного угля. Научно-информационный бюллетень "АНРИ" № 1, М., "ВНИИФТРИ", 1994.