

## ИНЕРЦИОННОЕ ОСАЖДЕНИЕ СУБМИКРОННЫХ АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ ТЯЖЕЛЫХ МЕТАЛЛОВ В ВОЛОКНИСТЫХ ФИЛЬТРАХ

© 2019 г. А. А. Кириш<sup>1,\*</sup>, П. А. Александров<sup>1</sup>, В. А. Кириш<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”  
Россия 123182 Москва, пл. Академика Курчатова, 1

<sup>2</sup>Институт физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН  
Россия 119071 Москва, Ленинский проспект, 31

\*e-mail: aa-kirsh@yandex.ru

Поступила в редакцию 22.10.2018 г.

После доработки 22.10.2018 г.

Принята к публикации 06.11.2018 г.

Исследовано инерционное осаждение субмикронных частиц высокой плотности в высокоэффективных фильтрах из субмикронных волокон. Экспериментально установлено, что фильтры полностью улавливают частицы при числах Стокса, значительно превышающих критические значения, выше которых возможен отскок частиц от волокон. Предполагается, что регистрируемый проскок радиоактивности через аналитические высокоэффективные фильтры при отборе проб воздуха с субмикронными частицами ядерного топлива связан с проскоком наночастиц — так называемых агрегатов отдачи, образующихся в результате самораспыления альфа-активных материалов.

DOI: 10.1134/S0023291219020058

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Вопросы тонкой очистки воздуха и технологических газов от субмикронных металлических частиц с большим удельным весом представляют интерес в атомной промышленности при анализе проб воздуха и создании аварийных фильтрующих систем. Для целей очистки газов используются высокоэффективные фильтрующие материалы из субмикронных волокон, так называемые НЕРА (High Efficiency Particulate Air) фильтры, эффективность улавливания субмикронных частиц которыми рассчитывается как

$$E = 1 - n/n_0 = 1 - \exp(-2aL\eta), \quad (1)$$

где  $n$ ,  $n_0$  — концентрация частиц за фильтром и перед ним,  $a$  — радиус волокна,  $U$  — скорость невозмущенного потока,  $L = \alpha H / \pi a^2$  — длина волокон, приходящихся на единицу площади,  $\alpha$  — плотность упаковки,  $H$  — толщина фильтра,  $\eta$  — коэффициент захвата (доля частиц, осаждающихся на волокно из набегающего потока), который зависит от радиуса частиц  $r$  и волокон  $a$ , параметров фильтра, условий фильтрации (скорости, температуры и давления) и от ряда других параметров, таких как форма и заряды частиц и волокон, структура и запыленность фильтров. В широком диапазоне скорости течения газа через фильтр зависимость эффективности улавливания частиц разной плотности от их радиуса проходит через

минимум в диапазоне значений  $r^* = 0.05-0.2$  мкм. В обычных условиях эксплуатации НЕРА-фильтров улавливание наиболее проникающих частиц с радиусом  $r^*$  происходит в результате их броуновского смещения с линий тока. Отсюда следует, что чем меньше  $r$  по сравнению с радиусом наиболее проникающих частиц  $r^*$ , тем больше их осаждаемость, так как при уменьшении  $r$  диффузионная подвижность частиц возрастает. Однако с ростом  $r$  начинает сказываться собственный геометрический размер частицы. В этом случае осаждение частиц увеличивается. При вычислении эффективности  $E$  по соотношению (1) используются аналитические формулы для коэффициентов захвата, полученные для поля течения в модельных фильтрах с однородной структурой из одинаковых волокон для случаев диффузионного осаждения частиц в точечном приближении,

$$\eta_D = 2.9k^{-1/3} (D/2aU)^{2/3}, \quad (2)$$

и осаждения за счет зацепления при  $R = r/a \ll 1$ ,

$$\eta_R = R^2/k, \quad (3)$$

где  $D$  — коэффициент диффузии частицы,  $k$  — гидродинамический фактор, связанный с силой сопротивления волокна  $F$  как  $k = 4\pi/F$ . Формулы для коэффициентов захвата с учетом эффекта скольжения газа на субмикронных волокнах

(с учетом числа Кнудсена) даны в [1–3]. В области минимума эффективности  $E(r)$ , соответствующей минимуму коэффициента захвата  $\eta$ , действуют оба механизма, приводящие к осаждению – диффузионное смещение и эффект зацепления (касания), причем эти эффекты не аддитивны [2]. И, как следует из формул (2) и (3), диффузионное осаждение частиц не зависит от плотности материала частиц  $\rho$ , поскольку не зависит от  $\rho$  коэффициент диффузии. Поэтому при выборе аэрозолей с  $r \approx r^*$  для испытания начальной эффективности промышленных фильтров плотность частиц не учитывается.

Улавливание наиболее проникающих частиц в условиях, характерных для начального этапа работы незапыленных фильтров, хорошо изучено [1–3]. Развита методика расчета эффективности фильтров для разных механизмов осаждения частиц, включая диффузию, зацепление, влияние скольжения газа на субмикронных волокнах. Исследовано влияние запаздывающих дальнедействующих молекулярных сил Ван-дер-Ваальса–Казимира, и развит метод расчета эффективности фильтров при одновременном действии основных механизмов осаждения [4]. В то же время недостаточно исследован инерционный механизм осаждения частиц на субмикронные волокна, который должен проявляться либо при большой скорости течения газа, либо для частиц с высокой плотностью. Инерция частиц увеличивает эффективность их осаждения в фильтре.

Инерционное осаждение частиц на волокна характеризуется числом Стокса – безразмерным отношением расстояния торможения частицы к радиусу волокна  $a$ , которое равно

$$St = 2C\rho r^2 U / 9\mu a,$$

где  $C$  – поправка Каннингема на скольжение газа на поверхности субмикронных частиц,  $\mu$  – динамическая вязкость газа [1]. Влияние инерционного осаждения на рост эффективности улавливания частиц начинает проявляться при  $St > 0.1$  [4]. При большой скорости потока или для тяжелых частиц число  $St$  может существенно превышать единицу, и в этом случае возможен отскок твердых частиц от поверхности волокон, приводящий к уменьшению эффективности фильтра. Эффективность осаждения, определяемая механизмами потери энергии частицей при столкновении с волокном, подробно рассмотрена в [5]. В этой работе получено выражение для коэффициента рестиитуции  $e_c$ , который равен отношению радиальных компонент скорости частицы после и до ее соударения с волокном и зависит от одного параметра  $\gamma$ , который, в свою очередь, является функцией плотности, модулей упругости и коэффициентов Пуассона волокна и частицы. В работах [5, 6] показано, что при абсолютно упругом столкнове-

нии ( $e_c = 1$ ) отскок может начинаться при  $St \approx 1$ , что согласуется с экспериментальными данными, полученными при осаждении частиц полистирола с плотностью  $\rho = 1 \text{ г/см}^3$  на волокна диаметром в несколько микрон [7–9]. В [6] также рассмотрен случай, когда при  $St \gg 1$  частицы, отскакившие от субмикронных волокон, в плотных фильтрах не успевают достигнуть скорости потока  $U$  за время до следующего столкновения. В этом случае коэффициент захвата инерционной частицы стремится к постоянному баллистическому пределу [10], и она может быть уловлена в фильтре при условии [6]

$$pa/\alpha(a+r) \ll St. \quad (4)$$

Расчеты эффективности улавливания тяжелых частиц НЕРА-фильтрами в условиях, когда  $St \gg 1$ , показывают, что проскок частиц может уменьшиться при увеличении плотности упаковки субмикронных волокон в фильтре, но такие эксперименты с НЕРА-фильтрами не проводились. Однако интерес к этому вопросу возник в связи с анализом аномального проскока радиоактивных загрязнений через высокоэффективные фильтры при заборе проб воздуха на Чернобыльской атомной электростанции (ЧАЭС) спустя два месяца после аварии [11].

В табл. 1 представлены некоторые данные измерений радиоактивности на отдельных фильтрующих слоях, полученные в 1986 г. Пробы отбирались на опытные стекловолоконистые фильтры типа ФСВ/У, после которых помещались сорбционные фильтры типа ЛФС-И-50. Характеристики фильтров ФСВ/У приведены в [12]. Они имеют высокую эффективность улавливания нерадиоактивных тестовых частиц наиболее проникающего размера с диаметром  $d \sim 0.1$  мкм, не ниже, чем  $E \approx 0.999$ . Однако, как следует из данных табл. 1, количество радиоактивной пыли, осевшей на первых фильтрах и на последующих сорбционных фильтрах, оказалось соизмеримым, и при этом изотопный состав пыли на первых и последующих фильтрах в каждой пробе оказался одним и тем же, что свидетельствует об аэрозольной природе проскока радиоактивности на фильтрах.

Возможной причиной проскока радиоактивных частиц отработанного топлива мог быть их отскок от волокон, поскольку частицы могли иметь компактную форму и, следовательно, высокую плотность. При скорости прокачки воздуха через фильтры, равной примерно 25 см/с, условия улавливания частиц соответствовали большим значениям инерционного числа Стокса,  $St > 1$ , при которых частицы должны были отскакивать от волокон и не задерживаться в фильтре. Из данных табл. 1 следует, что на первых (лобовых) фильтрах в колонках № 1 и № 2, относящихся к одновременному забору проб на разной высоте от

**Таблица 1.** Количество радионуклидов ( $\gamma$ -активность, Бк) на отдельных фильтрующих слоях [11]

Радионуклид	Проба 1				Проба 2		Проба 3		Проба 4	
	ФСВ	ЛФС	ЛФС	ЛФС	ФСВ	ЛФС	ФП	ФСВ	ФСВ	ЛФС
$^{144}\text{Ce}$	45.28	7.24	5.53	5.93	66.59	13.57	44.48	7.04	5.62	5.38
$^{141}\text{Ce}$	20.54	3.19	2.46	2.47	35.11	5.37	22.05	2.82	2.75	2.16
$^{131}\text{J}$	1.45	16.41	1.37	0.75	0.13	16.56	0.29	0.22	0.024	0.062
$^{103}\text{Ru}$	16.68	2.86	2.23	2.64	84.3	4.30	23.74	2.93	3.56	2.24
$^{106}\text{Rh}$	6.34	0.97	1.65	2.11	25.2	0.91	5.82	1.37	1.25	1.82
$^{137}\text{Cs}$	7.52	1.44	0.43	0.60	18.04	0.99	6.54	0.60	0.728	0.23
$^{95}\text{Zr}$	41.57	7.61	6.44	6.68	162.5	12.03	50.57	6.90	6.47	5.53
$^{95}\text{Nb}$	63.34	13.0	9.16	1.04	247.0	19.0	75.21	0.97	10.50	9.11
$^{134}\text{Cs}$	2.56	0.60	0.07	0.18	6.02	0.19	2.39	0.24	0.288	0.243
$^{140}\text{La}$	3.13	0.60	0.32	0.35	8.0	0.75	2.74	0.50	0.60	0.37

Примечания. Проба 1 (ФСВ/У + 3 слоя ЛФС-И-50) и проба 2 (ФСВ/У + 1 слой ЛФС-И-50) отбирались одновременно 25.06.1986 г. с 16.20 до 17.00 в течение 40 мин. Место отбора – БЩУ-3 (блок щитового управления 3-го блока), проба 1 – над полом на высоте 2 м, проба 2 – на высоте 0.5 м. Объем прокаченного воздуха  $Q = 0.74 \text{ м}^3$ , площадь фильтра  $S = 12.6 \text{ см}^2$ . Проба 3 (1 слой ФПП-15 + ФСВ/У) отбиралась 25.06.1986 г. между 12.00–17.00 в течение 222 мин в коридоре 1-го блока, отметка 9.00;  $Q = 5.55 \text{ м}^3$ ,  $S = 18.9 \text{ см}^2$ . Проба 4 (ФСВ/У + 1 слой ЛФС-И-50) отбиралась 23.06.1986 г. в районе штаба ЧАЭС;  $Q = 1.5 \text{ м}^3$ .

пола в помещении ЧАЭС, на фильтре, установленном ближе к полу, активность вдвое больше, чем на фильтре, установленном выше. Это указывает на существенное влияние седиментации. Взвешенные в воздухе частицы *действительно были тяжелыми*. При этом на последующих фильтрах активность этих проб, как видим, примерно равна и соизмерима с их активностью на первых. Это следует отметить особо, поскольку за первыми НЕРА-фильтрами активности не должно было быть. Вся дисперсная фаза, содержащаяся в воздухе, должна была задержаться в первых фильтрах в каждой пробе. Присутствие в воздухе летучего соединения того же изотопного состава исключено. Также необъяснимо отсутствие экспоненциальной зависимости проскоков радиоактивности на трех сорбционных фильтрах в пробе 1, последовательно установленных за НЕРА-фильтром (т.е. нет аналогии с улавливанием йода).

#### *Неэффективная фильтрация самораспыляющихся радиоактивных аэрозолей*

Аналогичные результаты с тем же фильтрующим материалом ФСВ/У и при той же скорости были получены в “горячей” камере ГК-19 в РНЦ “Курчатовский институт” [13], где производились шлифовка и полировка образцов облученного уран-циркониевого топлива ( $\text{Zr}-38\% \text{ U}$ ) и образцов нержавеющей стали, содержащих продукты активации, в частности, нуклид  $^{60}\text{Co}$ . Гамма-спектрометрические измерения показали, что активность двух последовательно установленных

фильтров ФСВ/У по продуктам деления урана мало различается и составляет по  $^{134}\text{Cs}$  12.5 Бк на первом фильтре и 9.3 Бк на втором, а по  $^{137}\text{Cs}$  – соответственно 84.5 и 48.7 Бк. В то же время при фильтрации воздуха, содержавшего частицы стали, на втором фильтре активность ( $^{60}\text{Co}$ ) не была обнаружена, т.е. в этом случае радиоактивные частицы задерживались полностью. Такой же результат был получен при продувке двух последовательно соединенных фильтров инертным газом, выходящим из высокотемпературной печи дифференциального сканирующего калориметра NETZSCH DSC-404 G Pegasus, в которую загружались образцы облученного топлива состава  $\text{Zr}-38\% \text{ U}$  (обогащение по изотопу U-235 составляло 19.8%). Основной выход радиоактивных веществ при нагреве до  $T = 1700^\circ\text{C}$  имел место за счет летучих соединений и газов (Ar, Xe, Cs), из которых только изотопы Cs регистрировались на обоих фильтрах. В результате активность на обоих фильтрах оказалась соизмеримой.

Возможность проскока радиоактивных веществ через НЕРА-фильтры обсуждается давно [14, 15]. Недавно сообщалось о прямой регистрации методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой с чувствительностью  $5 \times 10^{-3}$  Бк/ $\text{м}^3$  следов оксида плутония в воздухе, прошедшем через шесть высокоэффективных фильтров [16]. В работе [17] исследовалась фильтрация через НЕРА-фильтр аэрозолей тяжелых частиц  $^{239}\text{PuO}_2$  со средним аэродинамическим диаметром 0.45 мкм и  $\beta_g \approx 2$  при скорости потока

3–12 см/с, и показано, что проскок радиоактивности регистрировался, но составлял малые доли процента. Авторы подтвердили возможность выдувания радиоактивности чистым воздухом из осадка частиц, осевших ранее, причем скорость этого процесса составляла всего  $2.3 \times 10^{-7}$  в час от их общего количества на фильтре. Примерно такие же значения получены в других работах, цитируемых в [18]. В то же время влияние отрыва осевших частиц в результате альфа-распада (re-suspension) на эффективность фильтра маловероятно, поскольку известно, что субмикронная частица с размером  $2r \approx 0.2\text{--}0.3$  мкм теряет свою начальную скорость и приобретает скорость потока, равную  $U$ , и, как все другие частицы, должна осесть в ближайших слоях волокон. То же самое относится и к частицам на фильтре, в которые могут попасть альфа-частицы, вылетевшие из соседних частиц. (Наши исследования возможности перемещения частиц, осевших на фильтре, при бомбардировке запыленного фильтра высокоэнергетичными ионами тяжелых металлов с энергией более 30 МэВ не показали отскока).

Небольшой проскок радиоактивности через НЕРА-фильтры, наблюдавшийся в работах [15–17], также можно было бы связать с проскоком наночастиц, называемых агрегатами отдачи, которые образуются в результате эмиссии с поверхности альфа-радиоактивных материалов. Эффект самораспыления веществ, содержащих альфа-нуклиды, был исследован Маковым и Руссом в 1910 г. Для вылетающих с поверхности наночастиц Лоусон в 1919 г. ввел термин “агрегатная отдача”, что подчеркивало вылет не ионов, а агрегатов, состоящих из молекул “материнского” вещества, со средним размером около 10 нм. Ченг сообщил недавно [19], что размер агрегатов отдачи может быть равен одному нанометру. Заметим, что процесс эмиссии наночастиц из поверхностного слоя материалов, содержащих альфа-нуклиды, в результате агрегатной отдачи наблюдался также из поверхностного слоя ТВЭЛов под действием осколков деления атомов урана [20] и при распаде радона внутри крупных частиц [21]. О необходимости считаться с опасным присутствием агрегатов отдачи при фильтрации газов предупреждал еще Натансон [22].

Отметим, что в цитированных выше работах перенос через фильтр радиоактивности в результате альфа-распада нуклидов внутри частиц, осевших ранее на волокнах, исследовали при малой скорости потока и при этом регистрировали очень малое количество активности относительно общего задержанного количества, или сообщали об отсутствии проскока [23]. В представленных в табл. 1 данных проскок радиоактивности через НЕРА-фильтр соизмерим с ее долей, улов-

ленной на фильтре (суммарная активность на трех сорбционных фильтрах в первой пробе равно половине активности на первом НЕРА-фильтре). И поскольку обнаруженный аномальный проскок радиоактивности через НЕРА-фильтр получен при  $St > 1$ , то *нельзя априори утверждать*, что радиоактивность за первым фильтром *не связана* с инерционным отскоком частиц топлива от волокон фильтра.

В данном сообщении будет экспериментально изучено инерционное осаждение субмикронных частиц с высокой плотностью в НЕРА-фильтрах при  $St \gg 1$ , и рассмотрены возможные причины аномального проскока радиоактивности.

## 2. УЛАВЛИВАНИЕ ИНЕРЦИОННЫХ СУБМИКРОННЫХ ЧАСТИЦ В ФИЛЬТРЕ

### *Критическое число Стокса*

Об отскоке твердых частиц судят по уменьшению эффективности их улавливания с ростом скорости, или сравнивая с данными осаждения капелек тех же размера и плотности, что показывает, при каком значении  $St$  появляется разница в эффективности улавливания твердых и жидких частиц. Исследования отскока обычно проводились со сферическими частицами латекса и с фильтрами из металлических волокон, и было показано, что отскок частиц, в согласии с теорией упругого столкновения [5], начинался при  $St \approx 1$  [7–9, 24]. При неупругом столкновении с мягкими хлопковыми волокнами диаметром  $2a = 15$  мкм частиц хлористого натрия, образующихся при распылении раствора, и частиц железа, получаемых распылением порошка, отскока не наблюдалось даже при  $U = 10$  м/с, что соответствовало  $Re = 10$  и  $St = 5$  [25]. Не наблюдалось отскока и в работе японских авторов [26], где скорость потока достигала 50 м/с. В случае довольно высокопористого ( $\alpha = 0.0065$ ) фильтра из стальных волокон с  $2a = 8$  мкм субмикронные частицы  $ZnCl_2$  с  $2r = 0.3$  мкм не отскакивали даже при  $Re \approx 30$  и  $St = 10$ . Это можно объяснить только тем, что частицы были нежесткими. Их получали конденсацией паров соли. Однако плотность таких конденсационных частиц может быть существенно меньше, чем кристаллических. В этом случае, как следует из теории, если коэффициент реституции меньше единицы, то отскок начинает проявляться при  $St \gg 1$ . Например, если коэффициент  $e_c$  отличается всего на 20% от единицы, то критическое значение числа  $St$ , при превышении которого происходит отскок частиц, возрастает в несколько раз [5]. Обратим внимание на то, что коэффициент реституции  $e_c$  резко зависит от диаметра волокон: чем тоньше волокно, тем больше  $e_c$  и больше вероятность отскока. В этом случае

можно ожидать отскока тяжелых частиц от субмикронных волокон в фильтре при скорости, указанной в табл. 1, поскольку условия отбора проб соответствовали  $St \gg 1$ . Но таких исследований пока не проведено, и для выяснения механизма проскока радиоактивности была экспериментально проверена эффективность улавливания инерционных модельных нерадиоактивных частиц известного размера с высокой плотностью фильтрами ФСВ/У из той же партии, которая использовалась на ЧАЭС, и в тех же условиях (при той же скорости потока).

### Экспериментальная часть

Характеристики волокон фильтра ФСВ/У подробно описаны в [12]. Средний диаметр волокон составляет  $2a \approx 0.4$  мкм.

Для выполнения условия  $St > 1$  необходимо было, чтобы частицы с плотностью  $\rho > 10$  г/см<sup>3</sup> и при скорости потока порядка  $U > 30$  см/с имели диаметр более чем  $2r > 0.2$  мкм. В качестве исследуемых аэрозолей были использованы аэрозоли вольфрама и серебра, получаемые распылением высокодисперсных порошков. Их изображения, полученные в сканирующем электронном микроскопе (СЭМ), представлены на рис. 1–4. Порошки распыляли в камере объемом 200 л. Образующиеся частицы представляли собой агрегаты из наночастиц и имели несферическую форму. Крупные частицы с  $r > 1$  мкм быстро оседали (скорость седиментации таких частиц  $U_G > 1$  мм/с), поэтому метод оказался удобным для получения частиц с размерами именно в субмикронном диапазоне. Заметим, что плотность вольфрамовых частиц не соответствует тяжелым частицам, поскольку агрегаты были очень рыхлыми. Очень небольшая часть взвешенных частиц имела компактную форму, но неизвестна их истинная плотность. Чтобы исключить влияние формы частиц при оценке эффективности фильтров, опыты проводили со сферическими частицами (рис. 3), получаемыми в результате оплавления агрегатов серебряных частиц при пропускании потока аэрозоля с расходом 1 л/мин через печь длиной 700 мм при температуре  $T = 870^\circ\text{C}$ .

Счетная концентрация частиц перед фильтром обычно составляла  $n \approx (2-4) \times 10^3$  см<sup>-3</sup>. В качестве регистрирующих частицы приборов использовались лазерные многоканальные счетчики и фотометры. На рис. 5 приведен типичный спектр размеров оплавленных серебряных частиц, полученный с помощью многоканального лазерного аэрозольного спектрометра [27]. Поскольку концентрация частиц, получаемых диспергированием, значительно меньше, чем конденсационным методом, то влияние коагуляции на изменение размера частиц можно было не учи-

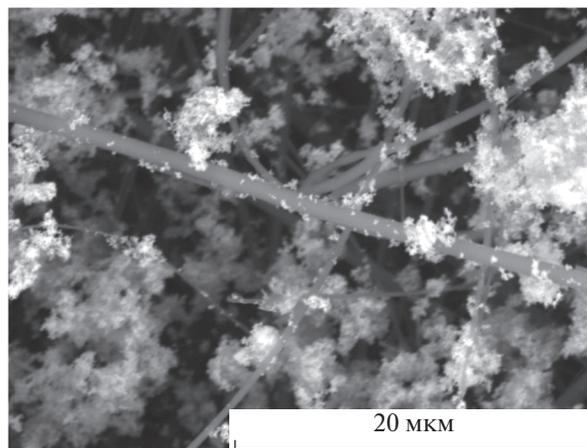


Рис. 1. СЭМ-изображение частиц вольфрама, полученных распылением его порошка, изготовленного в плазматроне, на фильтре ФСВ/У.

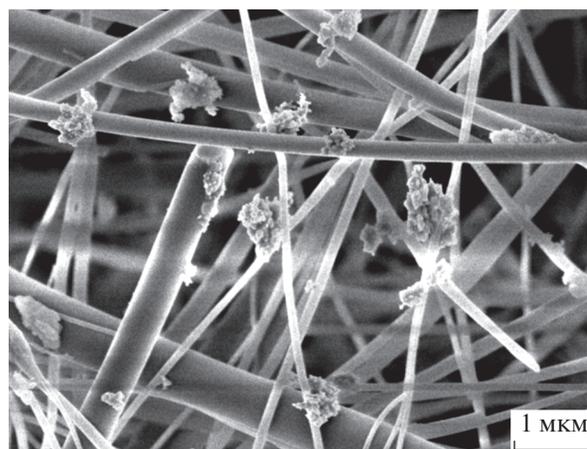


Рис. 2. СЭМ-изображение неоплавленных частиц серебра на фильтре ФСВ/У.

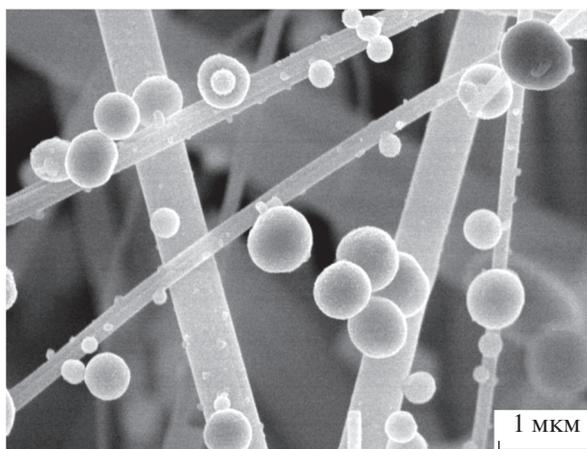


Рис. 3. СЭМ-изображение оплавленных частиц серебра на фильтре ФСВ/У.

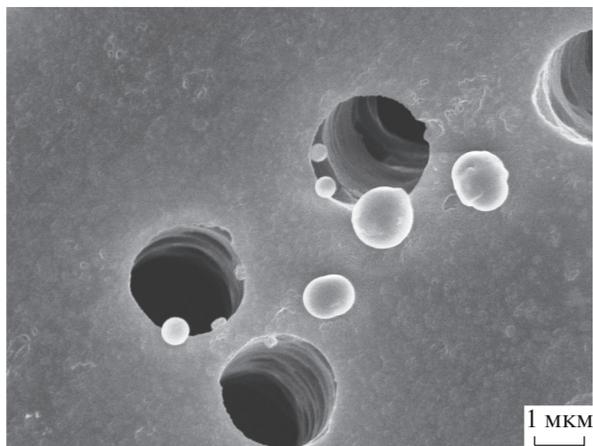


Рис. 4. СЭМ-изображение оплавленных частиц серебра на фильтре Флерова.

тывать. Также при большой скорости потока можно было не учитывать влияние биполярных зарядов на частицах. В контрольных опытах непосредственно перед фильтром все заряженные частицы удалялись из потока, хотя заряды на частицах не влияли на результаты измерений эффективности. При проведении экспериментов с компактными тяжелыми частицами особое внимание уделялось предотвращению потерь частиц в коммуникациях. Измерения эффективности фильтров проводились при скорости течения аэрозолей через фильтры в диапазоне  $U = 20\text{--}70$  см/с с частицами сферической и несферической формы, и всегда при переключении потоков через фильтр и через пустой фильтродержатель показания концентрации частиц с  $2r > 0.2$  за фильтром падали до нуля. Для частиц с радиусом 0.5 мкм при  $U = 70$  см/с число Стокса достигало  $St = 70$ .

На основании большого числа опытов, в том числе и с другими НЕРА-фильтрами, установлено, что тяжелые частицы при  $St \gg 1$  не проходят через НЕРА-фильтры. Следовательно, столь неэффективная фильтрация радиоактивных аэрозолей (см. табл. 1) не связана с проскоком субмикронных тяжелых частиц топлива.

### 3. ОБСУЖДЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Выше показано, что при скорости потока в диапазоне 20–70 см/с через суперфильтр из субмикронных волокон с  $2a = 0.4$  мкм при  $\alpha \approx 0.06$  проскока субмикронных компактных частиц из металлов с плотностью  $\rho \approx 10$  г/см<sup>3</sup> зарегистрировано не было. Причина может заключаться в недостаточной упругости соударения тяжелых частиц и тонких волокон и, соответственно, в малой величине коэффициента реституции  $e_c$ . В этом случае могло не достигаться критическое значе-

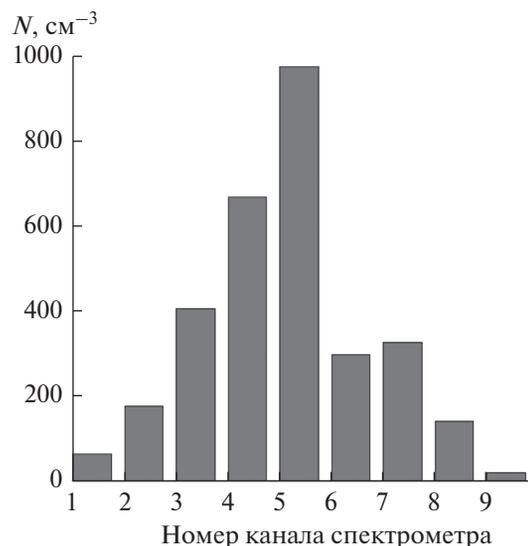


Рис. 5. Спектр размеров частиц оплавленного серебра: 0.15–0.2 мкм (канал 1), 0.2–0.25 (2), 0.25–0.3 (3), 0.3–0.4 (4), 0.4–0.5 (5), 0.5–0.7 (6), 0.7–1.0 (7), 1.0–1.5 (8), более 1.5 мкм (9).

ние  $St$ , при котором начинается отскок. Возможно, что тяжелые частицы могли не успеть приобрести скорость потока  $U$  между столкновениями и не достигнуть критического значения  $St$ , поскольку время релаксации частиц возрастает с ростом их плотности и мало среднее расстояние между тонкими волокнами в плотном фильтре, равное  $2b = 2a/\alpha^{1/2} \approx 1.5$  мкм, а с учетом хаотичности волокон в фильтре (рис. 4) оно еще меньше.

Отметим, что при числах Стокса  $St \gg 1$  инерционные частицы движутся около волокна по прямолинейным траекториям [10], и при отсутствии влияния других механизмов осаждения (диффузии и зацепления) частицы должны были бы касаться волокон и эффективно задерживаться даже в тонком фильтре, как в случае волокон, покрытых слоем вязкой жидкости. Например, для веерного модельного фильтра, состоящего всего из двадцати слоев волокон, численным решением трехмерного уравнения  $\nabla n = 0$ , где  $n$  — безразмерная концентрация, отнесенная к входной концентрации,  $\nabla$  — трехмерный оператор набла, находим, что проскок при баллистическом осаждении составляет менее чем  $n/n_0 = 0.1$ . Произведение толщины фильтра на величину плотности упаковки считалось постоянным.

В нашем случае количество слоев в фильтре ФСВ/У на порядок больше ( $H/2b \approx 200$ ,  $H$  — толщина фильтра), стеклянные волокна были сухими (пробы отбирались в помещении), и максимальное значение числа Стокса (отнесенное к среднему радиусу волокна) превышало  $St = 50$ ,

что удовлетворяет условию инерционного отскока с последующим поглощением (4) и указывает на возможность улавливания крупных частиц. Однако более вероятная причина, по-видимому, связана с улавливанием частиц в результате ситового эффекта, поскольку в толще фильтра имеется большое количество слоев и косых перекрестий волокон, между которыми застревают частицы, т.е. расстояния между волокнами в области перекрестий соизмеримы с размером частиц. Роль ситового эффекта для данного фильтра наглядно была продемонстрирована при пропускании через него разбавленных суспензий субмикронных монодисперсных сферических частиц латекса [28]. В этой работе было показано, что задерживается почти половина частиц с  $2r = 0.2$  мкм, причем в соответствии с расчетом, проведенным с учетом логнормального распределения пор фильтра по размерам. Отметим, что проскок наблюдался для суспензии, т.е. для частиц в жидкости, когда жидкая прослойка между частицей и волокном препятствует прилипанию и задержка частицы происходит, только если ее размер больше размера поры. В случае аэрозолей с такими же частицами ситовый эффект проявляется сильнее и проскок может быть еще меньше. Однако вполне вероятно, что все указанные выше эффекты действуют одновременно. Таким образом, наблюдавшийся на ЧАЭС аномальный проскок радиоактивности через НЕРА-фильтры не связан с проскоком субмикронных частиц топлива, а объясняется неэффективным улавливанием продуктов их самораспыления, которыми являются агрегаты отдачи.

Отметим, что число работ, посвященных улавливанию агрегатов отдачи, очень ограничено. В них в основном констатируется проскок радиоактивности через серию последовательно установленных высокоэффективных фильтров [16]. В то же время, из практики очистки воздуха от любых других наночастиц следует, что наночастицы в результате диффузии полностью осаждаются в фильтрах. Это относится и к свободным атомам — дочерним продуктам распада радона, и, следовательно, уменьшение размера частиц вплоть до атомарного, не является причиной их проскока через фильтр. Осаждение этих радиоактивных наночастиц изучается более полувека в связи с проблемой радиоактивности радона и дочерних продуктов его распада. В результате многочисленных экспериментов установлено что, в соответствии с теорией фильтрации, тонкого слоя субмикронных волокон вполне достаточно для полного удаления из воздуха продуктов распада эманаций. Это позволило создать дозиметр радона [29]. Более того, поскольку такие частицы не отскакивают после соприкосновения с поверхностью, то для изучения их свойств, в частности для измерения их диффузионной подвижности

(коэффициента диффузии), используются так называемые “диффузионные батареи” [30]. Например, показано, что при обычных условиях “атомарные” аэрозольные частицы RaA ( $^{214}\text{Pb}$ ) после образования, т.е. при распаде радона, присоединяют к себе несколько молекул воды [31]. Возможно, что это улучшает их прилипание к поверхностям, с которыми они соприкасаются, хотя они также прилипают к поверхности и в обезвоженном гелии.

Экспериментально отскок наночастиц от поверхности никогда не наблюдался, тем более металлических с размером около 1 нм при нормальной температуре. Невозможность такого отскока была недавно подтверждена Сато с сотр. методом молекулярной динамики [32]. Отсюда следует, что адгезионные свойства агрегатов отдачи отличаются от адгезионных свойств обычных наночастиц, в том числе от свойств радиоактивных продуктов распада радона, и проблема неэффективной фильтрации радиоактивных аэрозолей представляется еще более сложной. Не ясно, почему часть наночастиц, коснувшись волокон, не прилипла к ним (проскок наночастиц диаметром 10 нм не может превышать  $n/n_0 = 10^{-6}$ , т.е. все частицы должны были касаться волокон и не один раз). Ответ на этот вопрос укажет направление работ по совершенствованию фильтрующих систем.

Авторы выражают благодарность А.Е. Негину и М.Н. Шахову за помощь в работе и Н.В. Садовской за фотографирование образцов частиц.

Работа поддержана НИЦ “Курчатовский институт” (приказ № 115 от 30.01.2018).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Davies C.N.* Air Filtration. N.Y.: Academic Press, 1973.
2. *Kirsch A.A., Stechkina I.B.* // In: Fundamentals of Aerosol Science / Ed. by D.T. Shaw. N.Y.: Wiley-Interscience, 1978. P. 165.
3. *Brown R.C.* Air Filtration. Oxford: Pergamon Press, 1993. P. 269.
4. *Кирш В.А.* Фильтрация субмикронных аэрозолей волокнистыми фильтрами. Дис. ... докт. физ.-мат. наук. М: ИФХЭ РАН, 2012.
5. *Chernyakov A.L., Kirsch A.A., Kirsch V.A.* // Phys. Rev. E. 2011. V. 83. 056303.
6. *Черняков А.Л., Кирш А.А., Кирш В.А.* // Коллоид. журн. 2011. Т. 73. С. 387.
7. *Rembor H., Maus R., Umhauer H.* // Part. Part. Syst. Charact. 1999. V. 16. P. 54.
8. *Maus R., Umhauer H.* // J. Aerosol Sci. 1997. V. 28. P. 401.
9. *Phillips B.A., Davis W.T., Dever M.* // Filtr. Separat. 1996. V. 33. P. 933.
10. *Fuchs N.A.* Mechanics of Aerosols. Oxford: Pergamon Press, 1964.

11. *Кири А.А., Александров П.А., Кири В.А.* // 6-е Петряновские чтения, Москва, НИФХИ им. Л.Я. Карпова, 19–21 июня 2007. Тезисы докладов, С. 131.
12. *Черняков А.Л., Кири А.А.* // Коллоид. журн. 2014. Т. 76. С. 228.
13. *Александров П.А., Гайдученко А.Б., Кири А.А.* Эффект аномального проскока высокоактивных наноаэрозолей через фильтр. Научная сессия 25–31 янв. 2010, НИЯУ МИФИ-2011. Т. 1. С. 169. ISBN 978-5-7262-1383-5.
14. *McDowell W.J., Seeley F.G., Ryan M.T.* // Proc. 14<sup>th</sup> ERDA Air Cleaning Conference. 1976, Sun Valley, ID, P. 662.
15. *McDowell W.J., Seeley F.G., Ryan M.T.* // Health Phys. 1977. V. 32. P. 445.
16. *Li Z.-M., Su Y.-Y., Ren X.-J., Xu J., Zhou G.-Q., Zhai L.-H., Liu L.-B., Wie G.-Y., Huang N.-B.* // Aerosol Sci. Technol. 2011. V. 45. P. 1199.
17. *Yamada Y., Koizumi A., Miyamoto K.* // Radiat. Prot. Dosim. 1999. V. 82. P. 25.
18. *Icenhour A.S.* Transport of Radioactive Material by Alpha Recoil. Oak Ridge National Laboratory Report ORNL/TM-2005/22, May 2005.
19. *Cheng Y.S., Holmes T.D., George T.G., Marlow W.D.* // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 2005. B234. P. 219.
20. *Бессонов В.А.* // Атомная энергия. 1974. Т. 37. С. 52.
21. *Coombs M.A., Cuddihy R.G.* // J. Aerosol Sci. 1983. V. 14. P. 75.
22. *Натансон Г.Л.* // Успехи химии. 1956. Т. 25. С. 1429.
23. *Ettinger H.J., Elder G.C., Gonzales M.* Performance of Multiple HEPA Filter against Plutonium Aerosols. Los Alamos Scientific Laboratory Report LA-5544-PR, 1974.
24. *Klouda G.A., Fletcher R.A., Gillen J.G., Verkouteren J.R.* // Aerosol Sci. Technol. 2011. V. 45. P. 336.
25. *Hubbard J.A., Brockmann J.E., Dellinger J., Lucero D.A., Sanchez A.L., Servantes B.L.* // Aerosol Sci. Technol. 2012. V. 46. P. 138.
26. *Otani Y., Eryu K., Furuuchi M., Tajima N., Tekasakul P.* // Aerosol Air Qual. Res. 2007. V. 7. P. 343.
27. *Жуланов Ю.В.* // Коллоид. журн. 1988. Т. 50. С. 252.
28. *Кири А.А., Кушнарёва Е.Г., Стечкина И.Б., Кравцов А.К., Казакевич О.В.* // Теор. основы хим. технологии. 1984. Т. 28. С. 691.
29. *Басманов П.И., Огородников Б.И., Кириченко В.Н., Кири А.А.* А. с. № 145938 СССР, 1962.
30. *Cheng Y.S., Yeh H.C.* // J. Aerosol Sci. 1980. V. 11. P. 313.
31. *Cheng Y.S., Yeh H.C.* // J. Aerosol Sci. 1992. V. 23. P. 361.
32. *Sato S., Chen D.R., Pui D.Y.H.* // Aerosol Air Qual. Res. 2007. V. 7. P. 278.