

ОЧИСТКА ГАЗОВОЙ СРЕДЫ ОТ РАДИОАЭРОЗОЛЕЙ CsOH И Cs₂MoO₄, МЕЧЕННЫХ ЦЕЗИЕМ-137

© 2021 В. В. Кулемин, И. А. Румер, С. А. Кулюхин*

*Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН,
119071, Москва, Ленинский пр., д. 31, корп. 4
e-mail: kulyukhin@ipc.rssi.ru

Получена 21.10.2019, после доработки 04.03.2020, принята к публикации 11.03.2020

Исследован процесс очистки газовой фазы от радиоаэрозолей CsOH и Cs₂MoO₄, меченных цезием-137 (далее – ¹³⁷CsOH и ¹³⁷Cs₂MoO₄), с использованием установки, содержащей элементы скруббера с погружным слоем и спиральный фильтрующий элемент. В качестве погружного слоя использовали воду, базальтовую вату с диаметром волокон 2.0 мкм, перлит, смесь перлита с Ca(OH)₂. Показано, что данная установка позволяет проводить очистку газового потока от радиоаэрозолей ¹³⁷CsOH и ¹³⁷Cs₂MoO₄ с эффективностью более 99%.

Ключевые слова: цезий-137, аэрозоли, очистка газовой фазы

DOI: 10.31857/S0033831121020076

В процессе работы АЭС в тепловыделяющих элементах (ТВЭлах) накапливаются различные продукты деления, одним из которых является радионуклид цезия. Диффундируя по дислокациям облученного ядерного топлива (ОЯТ), радионуклид Cs накапливается на границе раздела ОЯТ и оболочки ТВЭла в виде различных соединений (CsI, Cs₂O, Cs₂MoO₄ и др.) [1]. При аварийной ситуации, связанной с расплавлением активной зоны, в результате разрушения циркониевой оболочки ТВЭлов происходит выход продуктов деления в газовую фазу. Продукты деления поступают в атмосферу защитной оболочки АЭС (контейнмент) в виде как газообразных соединений, так и аэрозолей. Соединения Cs, в том числе Cs₂O и Cs₂MoO₄, переходят во внутреннее пространство контейнмента в виде аэрозолей. Под действием паровоздушной среды радиоактивные аэрозоли Cs₂O трансформируются в радиоаэрозоли CsOH. Формирование аэрозолей и дальнейшие процессы их роста протекают по механизмам, ранее описанным для радиоаэрозолей CsI [2].

В работах [3–6] исследованы процессы локализации радиоаэрозолей ¹³⁷Cs¹³¹I на различных фильтрующих материалах. В работе [3] исследовано

поведение радиоаэрозолей ¹³⁷Cs¹³¹I, образующихся при испарении CsI с платинового нагревателя в газовую фазу аргона или воздуха, в процессе их локализации водными растворами и различными фильтрующими материалами (фильтр на основе ткани Петрянова (далее фильтр Петрянова), бумажный фильтр «белая лента», металлический мембранный фильтр TRUMEM). Изучена зависимость степени локализации радиоаэрозолей ¹³⁷Cs¹³¹I от различных факторов (количество сублимированного ¹³⁷Cs¹³¹I, количество барботеров в системе, размер сопла в системе барботирования, скорость газового потока). Получены данные по эффективности локализации радиоаэрозолей ¹³⁷Cs¹³¹I 10-слойным пакетом фильтров Петрянова из газового потока в отсутствие и в присутствии системы барботирования. Установлено, что при линейной скорости потока 2–3 см/с на 10-слойном пакете фильтров Петрянова общей толщиной 3 см поглощается около 97% от общего количества ¹³⁷Cs¹³¹I, возогнанного с Pt нагревателя. Показано, что система барботирования не влияет на эффективность локализации радиоаэрозолей ¹³⁷Cs¹³¹I фильтрами Петрянова, а только способствует снижению аэрозольной нагрузки на данные фильтры.

Следует отметить, что количество данных о локализации радиоаэрозолей CsOH и Cs_2MoO_4 , образующихся при их испарении с металлической поверхности в атмосферу воздуха, крайне ограничено. Изучение данных процессов и составило цель работы.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В работе использован радионуклид ^{137}Cs без носителя, поставляемый ОАО «Изотоп» в виде раствора $^{137}\text{CsNO}_3$. Препараты, меченные ^{137}Cs , готовили путем смешивания растворов CsOH и Cs_2MoO_4 с раствором $^{137}\text{CsNO}_3$ (концентрация 20 мг/мл) с последующей кристаллизацией $^{137}\text{CsOH}$ и $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ (удельная активность порядка 10^2 – 10^3 Бк/мг). Активность ^{137}Cs измеряли методом гамма-спектрометрии с помощью Ge–Li детекторов на многоканальном анализаторе. Радионуклид ^{137}Cs использовали в работе как радиоактивную метку для весовых количеств различных форм неактивного цезия. В связи с этим обозначения $^{137}\text{CsOH}$ и $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ относятся к меченым соединениям, а не к соединениям чистого радионуклида ^{137}Cs .

Молибдат цезия Cs_2MoO_4 и гидроксид кальция $\text{Ca}(\text{OH})_2$ были марки х.ч. Гидроксид цезия CsOH получали по методике, представленной в работе [7]. Перлит, использованный в работе, был марки М150 с размером гранул 0.16–0.5 мкм (ГОСТ 10832–2009).

Для изучения очистки газовой среды от радиоаэрозолей $^{137}\text{CsOH}$ и $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ в работе использовали установку, схема которой приведена на рисунке. Установка состояла из стеклянного реактора (1), спирального фильтрующего элемента (СФЭ) (2), платинового генератора радиоаэрозолей (3), камеры формирования аэрозолей (4), фильтра (5) на основе ткани Петрянова (ФП) и металлического мембранного фильтра марки TRUMEM (МФ) (6).

Генератор аэрозолей представлял собой платиновый нагреватель, который подсоединяли к аккумулятору на 12 В. Силу тока, подаваемого на нагреватель, регулировали реостатом.

Стеклянный реактор (1) состоял из двух сосудов – внешнего и внутреннего. Во внутреннем сосуде размещали СФЭ. В некоторых экспериментах

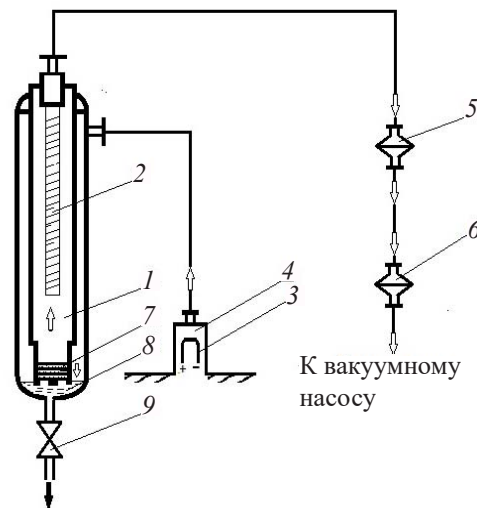


Схема экспериментальной установки. 1 – стеклянный реактор; 2 – спиральный фильтрующий элемент (СФЭ); 3 – генератор радиоаэрозолей; 4 – камера формирования аэрозолей; 5 – фильтр на основе ткани Петрянова; 6 – металлический мембранный фильтр марки TRUMEM; 7 – базальтовая вата; 8 – вода, перлит, смесь перлита и $\text{Ca}(\text{OH})_2$; 9 – кран.

в нижнюю часть внутреннего сосуда реактора (1) помещали 3 слоя базальтовой ваты толщиной 1 см каждый (7), а в нижнюю часть внешнего сосуда реактора (1) помещали либо 50 мл H_2O , либо 50 мл порошкообразного перлита, либо 50 мл смеси порошкообразных $\text{Ca}(\text{OH})_2$ и перлита в объемном отношении 1 : 1 (8).

В нижней части внешнего сосуда реактора (1) имеется кран (9) для удаления порошковой или водной фазы из реактора. Конструкция реактора разборная и позволяет извлекать СФЭ (2), а также базальтовую вату из внутреннего сосуда реактора.

В работе использовали базальтовую вату с диаметром волокон 2.0 ± 1.5 мкм, мембранный металлический фильтр марки TRUMEM с порами 3.0 мкм, а также спиральный фильтрующий элемент (СФЭ), имеющий фильтрующие зазоры, равные ~10 мкм [8].

Эксперимент проводили следующим образом. Устанавливали СФЭ во внутреннем сосуде реактора, а также вносили все необходимые вещества во внешний и внутренний сосуды реактора. Подсоединяли к реактору систему фильтров. Затем

Таблица 1. Распределение ^{137}Cs по различным частям установки в процессе пропускания газового потока, содержащего радиоаэрозоли $^{137}\text{CsOH}$ ($V = 1$ л/мин)*

№ эксп.	Количество $^{137}\text{CsOH}$, мг	Содержание ^{137}Cs , %							
		стенки реактора	вещество в реакторе	базальтовая вата			СФЭ	ФП	МФ
				1-й слой	2-й слой	3-й слой			
1	3	~34.1	–	–	–	–	~0.9	~46.9	~18.1
2	3	~49.5	~5.9 (50 мл воды)	–	–	–	~4.6	~34.7	~5.3
3	3	~33.8	~31.6 (6.9 г перлита)	–	–	–	~2.9	~17.0	~14.7
4	3	~36.2	~62.9 (16.8 г смеси $\text{Ca}(\text{OH})_2$ + перлит)	–	–	–	~0.6	~0.1	~0.2
5	3	~33.9	–	~65.0	~0.4	~0.1	~0.4	~0.1	~0.1
6	3	~52.9	~43.7 (50 мл воды)	~0.9	~0.9	~0.8	~0.3	~0.2	~0.3
7	30	~79.4	–	~20.3	~0.1	~0.1	~0.1	<0.02	<0.02
8	30	~15.5	~84.1 (50 мл воды)	~0.2	~0.1	~0.1	<0.02	<0.02	<0.02

* V – расход газовой фазы, л/мин; ФП – фильтр Петрянова; МФ – металлический мембранный фильтр; СФЭ – спиральный фильтрующий элемент. То же в табл. 2, 3

необходимое количество соли Cs, меченной ^{137}Cs , помещали на платиновый генератор аэрозолей (3), который затем устанавливали в камере формирования радиоаэрозолей (4). Подсоединяли камеру формирования радиоаэрозолей к реактору (1). После сборки системы включали форвакуумный насос и устанавливали расход воздуха 0.8–1 л/мин. Затем с помощью реостата доводили температуру платинового генератора радиоаэрозолей (3) до температуры 1073–1273 К. Выдерживали его при данной температуре в течение 20 с и выключали нагрев. После выключения нагрева в течение 20 мин продолжали осуществлять откачку воздуха из системы с помощью форвакуумного насоса. По окончании откачки проводили демонтаж установки. Удаляли водную или порошкообразную фазы из нижней полости внешнего сосуда реактора через кран (9), а также базальтовую вату из внутреннего сосуда реактора. После этого стенки внешнего и внутреннего сосуда реактора, так же как и СФЭ, промывали водой. В каждой полученной фракции определяли содержание радионуклида ^{137}Cs методом гамма-спектрометрии. Точность измерения $\pm 10\%$.

В ходе эксперимента радиоаэрозоли, сформировавшиеся в камере (4), сначала поступали во внешний сосуд реактора, где они, пройдя через слой воды или порошкообразного вещества в нижней полости внешнего сосуда реактора, направлялись во внутренний сосуд реактора. При этом газовый поток менял направление своего движения практи-

чески на 180°. При входе во внутренний сосуд реактора газовый поток проходил через базальтовую вату, расположенную в нижней полости внутреннего сосуда, и, пройдя через нее, поступал на СФЭ. На СФЭ проходила фильтрация газового потока от радиоаэрозолей ^{137}Cs , после чего он поступал в систему фильтров.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В табл. 1 приведены данные по содержанию радионуклида ^{137}Cs в различных фракциях в экспериментах с $^{137}\text{CsOH}$.

При испарении 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ в реакторе при отсутствии воды и других каких-либо веществ или материалов, за исключением СФЭ, на стенках сосудов реактора фиксируется ~34.1% ^{137}Cs (здесь и далее – проценты от общего количества цезия, взятого в эксперимент) (эксп. 1, табл. 1). На СФЭ локализации радиоаэрозолей $^{137}\text{CsOH}$ практически не происходит (менее 1%). В то же время на фильтре Петрянова и металлическом фильтре локализуется соответственно ~46.9 и ~18.1% ^{137}Cs .

Введение в реактор помимо СФЭ воды и других каких-либо веществ или материалов приводит к заметному перераспределению содержания ^{137}Cs по различным фракциям.

Так, введение в нижнюю полость внешнего сосуда реактора воды, порошкообразного перлита или

его смеси с порошкообразным $\text{Ca}(\text{OH})_2$ приводит к снижению содержания ^{137}Cs на фильтрах. Так, при введении 50 мл H_2O увеличивается содержание ^{137}Cs как на стенках реактора, так и на СФЭ (эксп. 2, табл. 1). Полученный эффект, по-видимому, связан с тем, что при прохождении газового потока через воду происходит образование аэрозолей воды, которые служат коллекторами аэрозолей $^{137}\text{CsOH}$. В дальнейшем происходит образование достаточно крупных водных аэрозолей, содержащих ^{137}Cs . Укрупненные водные аэрозоли в заметной степени осаждаются на стенках реактора и задерживаются на поверхности СФЭ при фильтрации газового потока. Как видно из табл. 1, в присутствии воды количество ^{137}Cs на стенках реактора увеличилось с ~34.1 до ~49.5%, а на СФЭ – с ~0.9 до ~4.6% (эксп. 1 и 2).

Следует отметить, что при барботировании газового потока через слой воды крупные частицы $^{137}\text{CsOH}$ достаточно быстро и хорошо растворяются в воде. В то же время частицы $^{137}\text{CsOH}$ нанометрового размера из-за своей относительной гидрофобности практически не растворяются в водной фазе и способны пройти через нее без какой-либо задержки [3]. Поскольку СФЭ малоэффективен для локализации наноаэрозолей из газового потока, на фильтрах наблюдается присутствие радионуклида ^{137}Cs . Так, несмотря на то что в воде поглощено всего ~5.9% ^{137}Cs , количество ^{137}Cs на фильтре Петрянова и металлическом фильтре уменьшилось и составляет соответственно ~34.7 и ~5.3% (эксп. 2, табл. 1).

При замене воды на порошкообразный перлит или его смесь с $\text{Ca}(\text{OH})_2$ количество ^{137}Cs , локализованное на стенках реактора, остается практически постоянным и находится в диапазоне ~(33.8–36.2)%. Как видно из табл. 1, на порошкообразных материалах локализовано ~31.6 (перлит) и ~62.9% [смесь перлита и $\text{Ca}(\text{OH})_2$] ^{137}Cs . Заметное поглощение аэрозолей ^{137}Cs на порошкообразных материалах, по-видимому, связано с тем, что в отличие от воды сыпучие материалы имеют сильно развитую поверхность. Кроме того, $^{137}\text{CsOH}$, по-видимому, имеет высокое химическое сродство к $\text{Ca}(\text{OH})_2$. В результате заметного поглощения ^{137}Cs на порошкообразных материалах заметно снижается степень локализации на фильтрах (эксп. 3 и 4). В эксперименте с перлитом общая степень локализации ^{137}Cs на СФЭ, фильтре Петрянова и металлическом

фильтре составляет ~34.6%, в то время как в эксперименте со смесью перлита и $\text{Ca}(\text{OH})_2$ аналогичная величина равняется всего ~0.9%.

Таким образом, введение воды или порошкообразных материалов, особенно $\text{Ca}(\text{OH})_2$, позволяет увеличить степень локализации радиоаэрозолей $^{137}\text{CsOH}$.

Для создания усиленной системы фильтрации в нижнюю полость внутреннего сосуда реактора была дополнительно введена базальтовая вата.

Введение трех слоев базальтовой ваты в нижнюю полость внутреннего сосуда реактора практически не сказывается на степени осаждения радиоаэрозолей $^{137}\text{CsOH}$ на стенках реактора, однако заметным образом снижает нагрузку на фильтры. Как видно из табл. 1, при испарении 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ степень фиксации ^{137}Cs на стенках реактора практически не изменяется и составляет ~33.9% (эксп. 5). В то же время использование базальтовой ваты позволяет локализовать ~65.5% ^{137}Cs . При этом более 99% ^{137}Cs локализуется на первом слое базальтовой ваты. На СФЭ, а также фильтре Петрянова и металлическом фильтре количество ^{137}Cs заметно уменьшилось, причем если на СФЭ количество ^{137}Cs уменьшилось в ~2 раза, то на фильтре Петрянова и металлическом фильтре количество ^{137}Cs уменьшилось соответственно в ~470 и ~180 раз (эксп. 1 и 5, табл. 1).

Как видно из табл. 1, степень осаждения радиоаэрозолей $^{137}\text{CsOH}$ на стенках реактора сильно зависит от количества $^{137}\text{CsOH}$, взятого в эксперимент. Так, при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ на стенках реактора фиксируется соответственно ~34.1 и ~79.4% ^{137}Cs (эксп. 5 и 7, табл. 1). Из-за увеличения количества ^{137}Cs , локализованного на стенках реактора, заметно снижается количество ^{137}Cs , локализованного на базальтовой вате и фильтрах. Так, при испарении 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ количество ^{137}Cs , локализованного на базальтовой вате, уменьшилось в ~3.2 раза и составляет ~20.3%. При испарении 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ также уменьшилось количество ^{137}Cs на СФЭ, фильтре Петрянова и металлическом фильтре. Как видно из табл. 1, при испарении 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ количество ^{137}Cs на СФЭ, фильтре Петрянова и металлическом фильтре уменьшилось в ~6 раз по сравнению с данными эксперимента, в котором испаряли 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ (эксп. 5 и 7).

Таблица 2. Распределение ^{137}Cs по различным частям установки в процессе пропускания газового потока, содержащего радиоаэрозоли $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ ($V = 1$ л/мин)

№ эксп.	Количество $^{137}\text{CsMoO}_4$, мг	Содержание ^{137}Cs , %							
		стенки реактора	вещество в реакторе	базальтовая вата			СФЭ	ФП	МФ
				1-й слой	2-й слой	3-й слой			
1	3	~33.4	~3.0 (50 мл воды)	–	–	–	~2.7	~58.3	~2.6
2	3	~5.9	~48.6 (6.6 г перлита)	–	–	–	~10.7	~26.8	~8.0
3	3	~50.3	–	~48.4	~0.4	~0.1	~0.4	~0.2	~0.2
4	3	~43.5	~51.8 (50 мл воды)	~1.7	~0.6	~0.6	~0.8	~0.5	~0.5
5	30	~60.1	–	~37.7	~0.8	~0.3	~0.5	~0.4	~0.2
6	30	~56.1	~39.7 (50 мл воды)	~1.6	~0.5	~0.7	~0.6	~0.4	~0.4

Размещение базальтовой ваты в нижней полости внутреннего сосуда реактора приводит к заметному поглощению ^{137}Cs в фазе воды в нижней полости внешнего сосуда реактора (эксп. 2 и 6).

Как видно из табл. 1, при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ в фазе воды поглощается соответственно ~43.7% и ~84.1% ^{137}Cs (эксп. 6 и 8). Это связано с тем, что в процессе эксперимента вода под давлением газового потока частично попадает в нижнюю полость внутреннего сосуда. В результате базальтовая вата покрывается водой и очистка газового потока протекает в результате как барботирования воды, так и фильтрации через слой базальтовой ваты. Данная схема имитирует работу скруббера с погружным слоем [9]. В данной схеме очистки газового потока частицы $^{137}\text{CsOH}$, задержанные на базальтовой вате, растворяются в воде, что приводит к увеличению содержания ^{137}Cs в водной фазе.

При испарении 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ концентрация аэрозольных частиц в камере формирования аэрозолей (4) ниже, чем в экспериментах с испарением 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$. В результате процессы укрупнения аэрозольных частиц в последнем случае проходят за более короткое время, чем в экспериментах с испарением 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$, а относительное количество ультрадисперсных частиц $^{137}\text{CsOH}$, поступающих в реактор с газовым потоком, выше в случае экспериментов с испарением 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$. В результате, как и в эксп. 2, табл. 1, увеличивается содержание ^{137}Cs на стенках реактора. При испарении 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ в газовой фазе преобладают частицы более крупного размера, которые имеют высокое сродство к воде.

Следует отметить, что в эксп. 6 и 8 поглощение аэрозолей $^{137}\text{CsOH}$ в воде приводит к резкому снижению содержания ^{137}Cs на СФЭ, фильтре Петрянова и металлическом фильтре. Так, при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ количество ^{137}Cs , локализованного на базальтовой вате, составляет соответственно ~2.6% и ~0.4%. Как видно из табл. 1, при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ суммарное количество ^{137}Cs на СФЭ, фильтре Петрянова и металлическом фильтре составляет соответственно ~0.8% и <0.02%.

Таким образом, использование в реакторе комбинации базальтовой ваты и воды позволяет провести очистку газового потока от радиоаэрозолей $^{137}\text{CsOH}$ с эффективностью более 99%.

В табл. 2 приведены данные по распределению ^{137}Cs в различных частях установки в экспериментах с радиоаэрозолями Cs_2MoO_4 , образующимися при испарении 3.0 и 30.0 мг Cs_2MoO_4 с Pt нагревателя.

Как видно из табл. 2, в отсутствие базальтовой ваты в нижней полости внутреннего сосуда реактора радиоаэрозоли $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$, образующиеся при испарении 3.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$, мало задерживаются в водной фазе (эксп. 1). При этом количество ^{137}Cs , локализованного на стенках реактора, составляет ~33.4%. Более низкое содержание ^{137}Cs в воде и на стенках реактора по сравнению с экспериментами с $^{137}\text{CsOH}$ (эксп. 2, табл. 1) может быть связано как с более низкой растворимостью $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ в воде по сравнению с $^{137}\text{CsOH}$, так и с его более низкой гидрофильностью.

В то же время в работе [3] показано, что ультрадисперсные частицы CsI способны проходить слой воды в процессе ее барботирования газовым пото-

Таблица 3. Распределение ^{137}Cs по различным частям установки в процессе пропускания газового потока, содержащего ультраколичества радиоаэрозолей $^{137}\text{CsNO}_3$ ($V = 1$ л/мин)

№ эксп.	Содержание ^{137}Cs , %							
	стенки реактора	вещество в реакторе	базальтовая вата			СФЭ	ФП	МФ
			1-й слой	2-й слой	3-й слой			
1	~12.8	–	~86.5	~0.2	~0.2	~0.1	~0.1	~0.1
2	~26.8	~68.2 (50 мл воды)	~4.3	~0.2	~0.2	~0.1	~0.1	~0.1

ком. Учитывая данный факт, можно предположить, что низкая степень поглощения ^{137}Cs в воде могла быть связана с более высоким содержанием в газовой фазе ультрадисперсных частиц $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ по сравнению с аналогичными экспериментами с $^{137}\text{CsOH}$. Однако более высокая степень локализации ^{137}Cs на СФЭ в экспериментах с $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ противоречит данному предположению. Как видно из табл. 1 и 2, степень локализации ^{137}Cs на СФЭ в экспериментах с 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ и 3.0 мг Cs_2MoO_4 составляет ~0.9 (эксп. 1, табл. 1) и ~2.7% (эксп. 1, табл. 2).

Из-за относительно низкого поглощения $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ в воде, на стенках реактора и на СФЭ заметное количество радиоаэрозолей поступает на фильтры. Как видно из табл. 2, суммарное содержание ^{137}Cs на фильтрах составляет ~63.6%.

В отличие от экспериментов с $^{137}\text{CsOH}$ несколько иная картина наблюдается в случае замены воды на порошкообразный перлит в нижней полости внешнего сосуда реактора. В результате пропускания газового потока, содержащего радиоаэрозоли $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$, образованные при испарении 3.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$, ~48.6% ^{137}Cs локализуется в фазе перлита. При этом только ~5.9% ^{137}Cs осаждается на стенках реактора (эксп. 2, табл. 2). Наблюдаемое явление можно объяснить тем фактом, что, по-видимому, радиоаэрозоли $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ имеют более высокий заряд, позволяющий им более эффективно взаимодействовать с поверхностью частиц перлита. С другой стороны не исключено, что радиоаэрозоли $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ содержат большее количество крупнодисперсных частиц, обладающих высокой степенью локализации на гранулированных материалах [4].

Присутствие крупнодисперсных частиц также подтверждается увеличением степени локализации ^{137}Cs на СФЭ в экспериментах с 3.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ по сравнению с экспериментами с 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$. Так, при испарении 3.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ содержание ^{137}Cs на СФЭ в ~3.7 раз выше, чем в аналогичных

экспериментах с 3.0 мг $^{137}\text{CsOH}$ (эксп. 2, табл. 2 и эксп. 3, табл. 1). Суммарное содержание ^{137}Cs на фильтрах составляет ~38.3%. Данное количество близко к суммарному содержанию ^{137}Cs на фильтрах в эксперименте с $^{137}\text{CsOH}$ (эксп. 3, табл. 1).

Аналогично экспериментам с $^{137}\text{CsOH}$ введение базальтовой ваты в нижнюю полость внутреннего сосуда реактора приводит как к увеличению содержания ^{137}Cs в реакторе (стенки реактора, базальтовая вата), так и снижению количества ^{137}Cs на СФЭ и фильтрах.

Так, при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ в отсутствие воды в нижней полости внешнего сосуда реактора на стенках реактора локализуется соответственно ~50.3 и ~60.1% ^{137}Cs (эксп. 3 и 5, табл. 2). Аналогичная картина наблюдалась в экспериментах с $^{137}\text{CsOH}$ (эксп. 5 и 7, табл. 1). Следует отметить, что увеличение количества $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ с 3.0 до 30.0 мг не сильно влияет на степень локализации ^{137}Cs на стенках реактора.

Помимо стенок реактора значимые количества ^{137}Cs зафиксированы на базальтовой вате. Так, при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ суммарное содержание ^{137}Cs на базальтовой вате составляет соответственно ~49 и ~38.8% (эксп. 3 и 5, табл. 2).

В результате при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ на стенках реактора, базальтовой вате и СФЭ локализовано ~99.6% и ~99.4% ^{137}Cs от его общего количества, взятого в эксперимент.

Аналогично экспериментам с $^{137}\text{CsOH}$ введение воды в нижнюю полость внешнего сосуда реактора позволяет снизить аэрозольную нагрузку на базальтовую вату, СФЭ и фильтры за счет поглощения ^{137}Cs водной фазой.

Как видно из табл. 2, при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ в присутствии воды в нижней полости внешнего сосуда реактора суммарное содержание ^{137}Cs в фазе воды и на стенках реактора составляет

соответственно ~95.3 и ~95.8% ^{137}Cs от его общего количества, взятого в эксперимент (эксп. 4 и 6).

Принимая во внимание содержание ^{137}Cs на базальтовой вате и СФЭ, расположенных также в реакторе, получаем, что при испарении 3.0 и 30.0 мг $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ в реакторе локализуется соответственно ~99.0 и ~99.2% ^{137}Cs .

Таким образом, использование базальтовой ваты и воды в реакторе позволяет провести локализацию ~(99–99.5)% ^{137}Cs , взятого в эксперимент в виде $^{137}\text{Cs}_2\text{MoO}_4$.

Следует отметить, что во всех экспериментах радиоаэрозоли присутствовали в весовых количествах. В то же время представляло интерес исследовать поведение радиоаэрозолей ^{137}Cs , присутствующих в газовой фазе в микроколичествах, в процессах локализации на установке, схема которой представлена на рисунке. С этой целью были проведены эксперименты с радиоаэрозолями ^{137}Cs , образующимися в результате испарения 0.1 мл раствора $^{137}\text{CsNO}_3$ без носителя.

В табл. 3 приведены данные по распределению ^{137}Cs по различным частям установки в экспериментах с испарением $^{137}\text{CsNO}_3$.

Как видно из табл. 3, несмотря на ультрамикроколичества радиоаэрозолей $^{137}\text{CsNO}_3$ в газовой фазе, на стенках реактора локализуется от ~12.8 до ~26.8% ^{137}Cs . Увеличение количества ^{137}Cs на стенках реактора в экспериментах с введением воды в нижнюю полость внешнего сосуда реактора связано, по-видимому, с дополнительным осаждением водных аэрозолей, содержащих ^{137}Cs , на поверхности стенок реактора (эксп. 2).

В отсутствие воды основные количества ^{137}Cs зафиксированы на базальтовой вате (~86.9% ^{137}Cs) (эксп. 1, табл. 3). Как отмечалось выше, в присутствии воды в нижней полости внешнего сосуда реактора при пропускании газового потока базальтовая вата покрывается слоем воды. Из-за высокой растворимости $^{137}\text{CsNO}_3$ основные количества ^{137}Cs присутствуют в фазе воды (~68.2%). В то же время часть радиоаэрозолей, локализованных на базальтовой вате, находится в нерастворимой в воде форме и составляет основную массу активности, присутствующей на базальтовой вате. Как видно из данных эксп. 2 табл. 3, суммарное содержание ^{137}Cs на базальтовой вате составляет всего ~4.7%. Принимая данные эксп. 1, табл. 3, можно сделать вывод о том,

что доля растворимых в воде радиоаэрозолей ^{137}Cs , образующихся при испарении ультраколичеств $^{137}\text{CsNO}_3$ с платинового генератора радиоаэрозолей, составляет ~95%.

Присутствие базальтовой ваты в нижней полости внутреннего сосуда реактора позволяет в отсутствие и в присутствии воды в нижней полости внешнего сосуда реактора провести очистку газового потока от микроколичеств радиоаэрозолей $^{137}\text{CsNO}_3$ с эффективностью более 99.7%.

В заключение следует отметить, что разработанная схема реактора с применением базальтовой ваты и СФЭ позволяет провести очистку газового потока от радиоаэрозолей CsOH и Cs_2MoO_4 , меченных цезием-137, с эффективностью более 99%. При этом следует отметить высокую степень адсорбции аэрозолей на стенках реактора. Этот процесс может стать причиной загрязнения газоходов на различных радиохимических объектах. Подробное изучение данного процесса может составить цель отдельного исследования.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Кравченко Н.Г.* Электрохимические свойства, растворение и химическое состояние молибдена и технеция в растворах азотной кислоты: Автореф. дис. к.х.н. М.: ИФХЭ РАН, 2013.
2. *Мелихов И.В., Михеев Н.Б., Кулюхин С.А. и др.* // Изв. АН. Сер. хим. 2010. № 8. С. 1445–1449.
3. *Кулюхин С.А., Кулемин В.В., Михеев Н.Б. и др.* // Радиохимия. 2008. Т. 50, № 3. С. 261–268.
4. *Кулюхин С.А., Крапухин В.Б., Богачев Е.Н. и др.* // Радиохимия. 2008. Т. 50, № 5. С. 420–425.
5. State of the Art Report on Nuclear Aerosols: Report NEA/CSNI. 2009. N R5. 385 p.
6. *Крапухин В.Б., Кулемин В.В., Лавриков В.А. и др.* // Экол. системы и приборы. 2014. № 2. С. 10–14.
7. *Михеев Н.Б., Кулемин В.В., Лавриков В.А. и др.* // Радиохимия. 2012. Т. 54, № 3. С. 237–242.
8. *Крапухин В.Б., Кулюхин С.А.* // Водоснабжение и сан. техника. 2018. № 5. С. 27–35.
9. Design of Off-Gas and Air Cleaning Systems at NPP: IAEA Tech. Rep. Ser. 1987. N 274.