

# ОСОБЕННОСТИ ПРОСТРАНСТВЕННОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПЫЛЕВЫХ МАСС И АДСОРБИРОВАННЫХ ХИМИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ В ФИЛЬТРАХ АЭС

*О.П. Леденёв, И.М. Неклюдов, П.Я. Полтинин, Л.И. Фёдорова*  
 НИЦ «Харьковский физико-технический институт»,  
 г. Харьков, Украина

Выявлены особенности адсорбции из воздуха химических элементов и их изотопов в угольных фильтрах АУ-1500 атомных электростанций. Показано, что неоднородное распределение элементов внутри фильтра, найденное ранее методом гамма-активационного анализа, хорошо коррелирует с особенностями распределения пылевых масс, исследованного авторами. Это обстоятельство указывает на важную роль пылевых фракций адсорбента, находящихся в фильтре, в адсорбции элементов и их изотопов. Рассмотрены физические причины, приводящие к такому характеру взаимодействия переносимых воздухом элементов с пылевыми скоплениями. Проведен анализ влияния этих процессов на работоспособность фильтров и удержание накопленного материала.

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Угольные адсорбционные фильтры, используемые на атомных электростанциях (АЭС) для очистки воздуха от радиоактивного йода, его летучих химических соединений и других химических элементов и их радиоактивных изотопов, играют важную роль как в обеспечении безопасности сотрудников станции, так и в экологической безопасности окружающей среды. Особенности работы фильтров в процессе эксплуатации и проблемы, связанные с ростом их сопротивления протеканию воздуха, исследовались ранее [1, 2]. Было установлено, что в процессе работы фильтр, заполненный гранулированным угольным адсорбентом, испытывает воздействие турбулентного воздушного потока, который вовлекает в локальное движение приповерхностный слой, что приводит к постепенному разрушению гранул угля до пылевидного состояния. Дисперсная угольная фракция переходит в аэрозольное состояние и переносится воздухом внутрь адсорбента, заполняя объем между гранулами. Это приводит к постепенному ухудшению его аэродинамических качеств, что проявляется в росте сопротивления протеканию воздуха. Было обнаружено [3], что распределение формирующихся пылевых масс внутри гранулированной структуры фильтра представляет собой некоторое упорядоченное состояние, характеризующееся наличием ряда максимумов плотности пыли. Максимумы различаются характерными размерами находящихся в них частиц и расположены на разном расстоянии от поверхности. Эти максимумы подобны тем, которые наблюдаются в хроматографических колонках при прохождении через них смесей сложного молекулярного состава [4]. В последнем случае происходит разделение смесей, обусловленное зависимостью от их массы скорости прохождения молекулами колонки. Однако наблюдаются и некоторые существенные отличия. Если в хроматографии используется локальный конечный источник в виде тонкого слоя исследуемой смеси, помещаемого в начале колонки, то в работающем в многолетнем цикле (15 лет) воздушном фильтре

приповерхностный источник пыли генерирует ее непрерывно.

Исследованию и обсуждению этих вопросов, важных для процессов распространения и взаимодействия аэрозольных потоков с гранулированной средой, и посвящена настоящая работа. В работе также выясняется роль пылевых максимумов в преимущественной сорбции химических элементов и их изотопов и исследуется, как это сказывается на работе фильтров.

## 2. СТРУКТУРА ПЫЛЕВОЙ УГОЛЬНОЙ ФРАКЦИИ И ОСОБЕННОСТИ ЕЕ ПЕРЕНОСА

Гранулы угольного адсорбента СКТ-3, имеющие цилиндрическую форму длиной 3,2 мм и диаметром 1,8 мм, как и другие угольные адсорбционные материалы, обладают сложной внутренней структурой. Они состоят из адсорбционных пор различных диаметров: от нескольких ангстрем до более крупных, имеющих субмикронные размеры. Характерное распределение этих пор по размерам имеет вид кривой с несколькими узкими максимумами [5]. Соответствующие им суммарные объемы представлены ступенчатой зависимостью, вид которой показан на рис. 1.

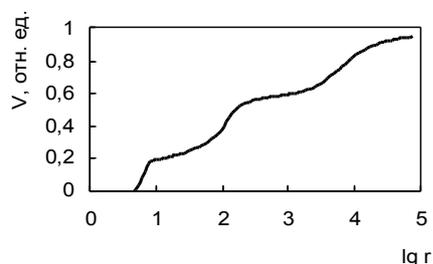


Рис. 1. Характерная зависимость суммарного объема  $V$  пор адсорбента от логарифма их радиуса  $r(\text{Å})$

Этот график получен методом кумулятивного суммирования зависимости производной  $dV/d(\lg r)$

от  $lg r$  [5]. Важный вопрос, связанный с особенностями адсорбции в порах, отличающихся по величине, мы обсудим позднее. Сейчас же отметим, что такая внутренняя структура гранул угольного адсорбента с наличием пор ряда выделенных размеров приводит к тому, что при их разрушении также возникают частицы пыли с дискретным набором их размеров. Так, стандартный процесс принудительного диспергирования гранул, проводимый методом катящегося валька, приводит к получению смеси пылевых фракций, различных размеров, а не к монотонному распределению их. Эта особенность разрушения, видимо, характерна и для иных способов превращения гранул в пыль, например, в том же адсорбере при деструкции их в поверхностном слое потоком воздуха. Характерное распределение пыли по размерам, полученное при движении локальной пылевой горки под действием вибрации по слегка наклонной слабощероховатой подложке, показано на рис. 2.

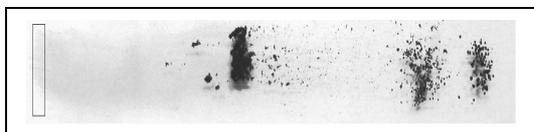


Рис. 2. Пылевой след на подложке при движении пылевого сгустка слева направо под действием вибрации (начальная позиция слева показана в виде прямоугольника)

Видно, что при движении пылевой пакет разделяется из-за различия скоростей перемещения на крупную фракцию с диаметром частиц  $d \sim 100$  мкм (правый сгусток), двигающуюся наиболее быстро, и более мелкую с  $d \sim 30$  мкм (второй сгусток справа). В середине фотографии расположен сгусток пыли с  $d \sim 10$  мкм, в котором присутствует и пыль с  $d \sim 1$  мкм, а также виден пылевой след с размерами частиц от 1 мкм до субмикронных. Более мелкие фракции в оптической системе не видны, хотя они имеются в пылевой массе.

В гранулированной среде адсорбера аэрозоль, состоящий из угольных пылевых частиц и воздуха, постепенно, по мере переноса в глубь адсорбера, разделяется на фракции, отличающиеся размерами частиц. Это связано с тем, что в случае, когда длина свободного пробега молекул воздуха  $l$  меньше радиуса сферической частицы  $r$ , силы увлечения, действующие на нее со стороны воздуха, обусловлены лишь силой Стокса:

$$F_s = 6\pi\eta r v, \quad (1)$$

где  $\eta$  – вязкость воздуха;  $v$  – его скорость относительно частицы. Ускорения, испытываемые пылинками, будут при этом равны  $a = F_s/m$ , где  $m$  – масса частицы. Их зависимость от радиуса частицы  $r$  определяется в виде

$$a = 9\eta v / 2\rho r^2, \quad (2)$$

где  $\rho$  – плотность материала частиц. Учитывая, что в среде с диссипацией средняя скорость частицы пропорциональна ускорению, видно, что скорость

переноса частиц является функцией ее размера. В адсорбере наибольшие скорости переноса имеют самые малые частицы.

Как было показано в [3], это обстоятельство приводит к тому, что пыль в адсорбере разделяется на фракции по скорости движения, и расположение максимумов плотности, как отмечалось выше, подобно известному в хроматографии. В исследуемом нами случае наблюдаются максимумы плотности пыли в условиях, когда пыль генерируется непрерывно, тогда как считалось, что для появления четких максимумов в хроматографии необходимо иметь единичный невозобновляемый источник и, желательнее, чтобы его толщина была существенно меньше, чем длина колонки. Таким образом, оказалось, что в рассматриваемом пылевом случае происходит непрерывное добавление пыли в адсорбер. Генерируемая пыль имеет фракции частиц выделенных размеров и, тем не менее, это не сказывается на форме максимумов и не ведет к их полному расплыванию. Этот факт можно понять, если учесть, что скорость переноса пылинок данного размера зависит не только от характера их рассеяния на гранулах угольного адсорбента, но в большей степени от характера рассеяния друг на друге. Действительно, в первом приближении столкновение пылинок любого из указанных размеров с гранулой можно описать как упругое соударения частиц с сильно отличающейся массой. При этом поперечный к границе импульс изменяется на обратный, а продольный – полностью сохраняет свою величину. В этом случае поток массы вдоль канала, по которому пролетает частица, сохраняет свою величину и не возникает «торможения» потока. Причем в силу неидеальности формы частиц пыли и возможности их деформирования и разрушения рассеяние на гранулах происходит с некоторой долей диссипации импульса и энергии частиц. Но гораздо более важными являются столкновения частиц пыли друг с другом. В этом случае длина пробега отличается от длины или размера канала  $l_c$  между гранулами и равна расстоянию между частицами в аэрозоле  $l_p$ . Это расстояние зависит от плотности частиц  $n$  и может быть представлено как  $l_p \approx V/n^{1/3}$ , где  $V$  – объем, занимаемый аэрозолем. При этом характерный коэффициент диффузии при заданной скорости частиц  $v_p$  будет равен  $D_p = l_p v_p \sim 1/n^{1/3}$ . Отметим, что в рассмотренном простейшем случае коэффициент диффузии при увеличении плотности частиц данного сорта будет уменьшаться. При этом важным является наличие и плотность частиц одного размера, так как пылинки, существенно различающиеся по размерам и массе, не являются эффективными центрами рассеяния друг для друга в рассматриваемом нами смысле [6]. Столкновения с частицами существенно большего размера и массы, как и с гранулами адсорбента, не приводят к передаче импульса и также не влияют эффективно на перенос. Как было показано в [2], в работающем адсорбере частицы пыли всех размеров, образующиеся вблизи его поверхности, захватываются и переносятся потоком воздуха. Как сле-

дует из уравнения (2), частицы малых размеров приобретают большую скорость и быстрее уходят в адсорбер. Скорость переноса более крупных частиц оказывается меньшей. Однако малые частицы, возникшие на последующих стадиях работы, догоняют более крупные и в силу большого различия масс и малого рассеяния проходят через их пылевой сгусток с малым уменьшением своей скорости. Тогда как однотипные частицы резко теряют свою скорость и формируют сгусток пыли, в котором все частицы имеют близкие размеры. По мере роста плотности сгустка частиц, как было показано выше, падает их коэффициент диффузии и усредненная скорость переноса. Таким образом, происходит формирование сгустков фракций пыли, отличающихся по размерам. При этом фракции частиц более крупных размеров оказываются менее подвижными, и по мере работы адсорбера они формируют вблизи поверхности пылевой слой, состоящий из частиц всех возможных в данном процессе размеров. В этом слое присутствуют частицы как очень малых размеров, которые еще не успели проникнуть в глубь адсорбера, так малоподвижные крупные частицы. В такой среде при достижении достаточной плотности начинается процесс структурообразования [7].

### 3. КОРРЕЛЯЦИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПЫЛЕВЫХ МАСС И АДСОРБИРОВАННЫХ ХИМИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ

Как было обнаружено [3], распределение пылевых масс, полученное в ходе модельного эксперимента в гранулированной среде угольного адсорбента СКТ-3, имеет вид, приведенный на рис. 3.

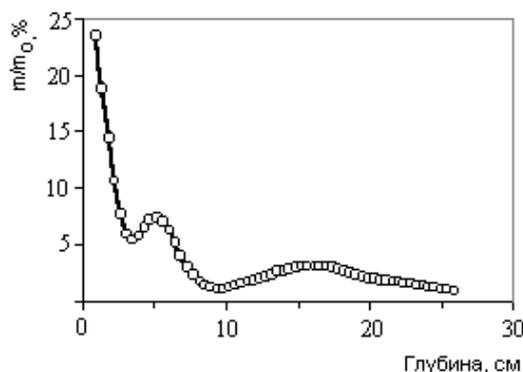


Рис. 3. Распределение в модельном эксперименте относительной массы пылевых фракций в зависимости от расстояния от поверхности адсорбера [3]

Отметим, что распределение пыли в адсорберах по глубине слоя после их многолетней эксплуатации на АЭС не исследовалось. Тем не менее, были проведены развернутые исследования распределения йода, бария, стронция и ряда других элементов методом гамма-активационного анализа [8].

Для этого были взяты образцы угля (керны) в двух позициях (и на периферии адсорбера) вдоль длины слоя адсорбента  $L$ . Как оказалось, распределение элементов имело вид кривых (рис. 4, 6, 7) с

явно выраженными максимумами, наличие которых не нашло объяснения в работе [8].

Из графика на рис. 4, видно, что йод по глубине адсорбера распределен неоднородно. Имеется ярко выраженный максимум вблизи поверхности, который спадает на глубине  $\sim 10$  см. Также виден слабый максимум в районе 15 см, и заметен рост содержания йода в области выхода из адсорбера.

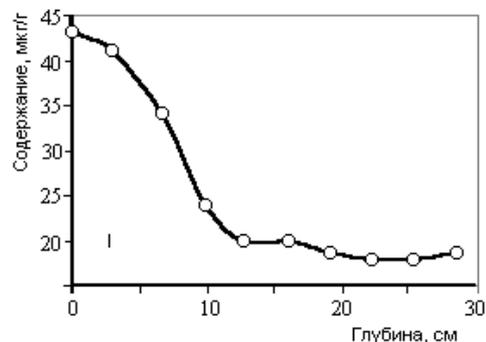


Рис. 4. Распределение йода в адсорбере по данным гамма-анализа [8]

Эти особенности хорошо совпадают с содержанием пыли в таком адсорбере, если, основываясь на данных работы [3] (см. рис. 3), ввести большее (примерно на порядок) время экспозиции при расчете кривых. Тогда второй максимум, центр которого расположен вблизи 7 см, сдвинется в глубь адсорбера. Подбором времени можно его расположить в районе  $\sim 15$  см. Третий же максимум, находящийся на (см. рис. 3) в области 15 см, окажется при этом вне адсорбера, так что только его начальная часть будет еще находиться в нем. Это распределение приведено на рис. 5.

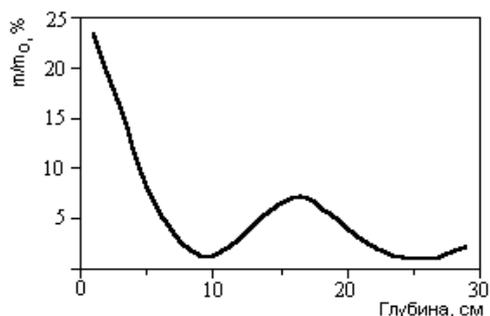


Рис. 5. Расчетное распределение плотности пылевых масс, полученное на основе результатов работы [3]

На рис. 6 приведены данные распределения бария по длине слоя адсорбента, полученные в [8].

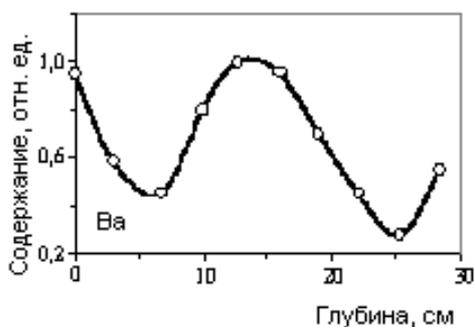


Рис. 6. Распределение бария в адсорбере по данным гамма-анализа [8]

Как и йод, барий распределен крайне неоднородно, но его максимумы также явно приходятся на максимумы распределения пыли (см. рис. 5).

Распределение стронция по данным гамма-анализа (см. рис. 7) имеет такой же немонотонный вид, совпадающий с максимумами пылевых масс, как и распределения йода и бария. Между этими распределениями имеются некоторые отличия, объясняемые особенностями взаимодействия этих элементов с угольными гранулами и пылевыми фракциями, которые будут обсуждены ниже. Отметим, что распределение всех этих элементов исследовалось методом гамма-анализа на керне, взятом на периферии фильтра.

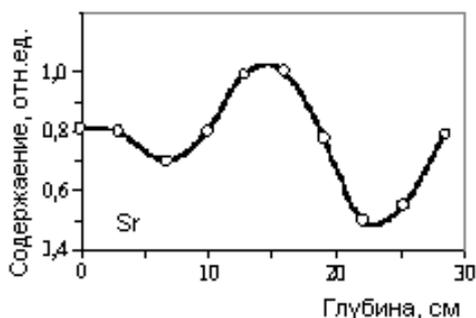


Рис. 7. Распределение стронция в адсорбере по данным гамма-анализа [8]

При взятии пробы из центра адсорбера в [8] были получены несколько иные распределения максимумов стронция, которые полностью согласуются с предположением об их пылевой природе. Действительно, в исследуемом адсорбере (диаметром 1 м) протекание воздуха в различных его областях (центральная часть или периферийная) несколько отличается, что связано с особенностями генерации пыли в различных местах на его поверхности. Поэтому распределения имеют максимумы, расположенные на несколько различающихся расстояниях по глубине адсорбционного слоя.

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Как видно из результатов сравнения данных, полученных в модельных исследованиях распределения плотности пылевых масс и распределения плотности элементов в адсорбере, взятых из данных по гамма-анализу, распределения пыли и элементов имеют сходный характер.

Содержание йода в гранулах фильтра в месте, где почти отсутствует пыль ( $L \approx 25$  см), составляет около 18 мкг/г. Полагая, что вариация состава полностью связана с пылевой массой, получим содержание йода в пыли в начальной области фильтра  $\sim 100$  мкг/г. Таким образом, пыль обладает более сильными адсорбционными свойствами по йоду (примерно в 5 раз), чем гранулы. Это связано с тем, что при дроблении гранул, во-первых, увеличивается их поверхность, через которую адсорбируемые элементы могут попасть внутрь угольного адсорбента к малым порам, имеющим максимальную поверхность, на которой и происходит наиболее интенсивная адсорбция. Во-вторых, энергия активации, связанная с адсорбционным процессом, в малых порах оказывается увеличенной [9]. Согласно зависимости, представленной на рис. 4, почти весь йод, связанный с пылью, адсорбируется на первом пылевом максимуме, так что содержание его во втором пылевом максимуме ( $L \approx 15$  см) почти не отличается от гранул.

Для бария и стронция картина несколько иная. Как видно из графиков (см. рис. 6 и 7), первый максимум пыли не является для них основным поглотителем, тогда как второй пылевой пик, свободный от излишнего количества йода, адсорбирует основную массу этих элементов. Учтем, что в максимуме второго пика сосредоточено всего около 7% относительной избыточной массы пыли, но приходится почти 70% поглощенной массы бария и 50% стронция. Простое сравнение показывает, что эффективность второго пылевого пика примерно в 14-15 раз больше для бария, чем гранулы, и почти в 30 раз для стронция. Относительно малое поглощение их на первом пылевом пике, видимо, связано с тем, что там они вытесняются адсорбируемым йодом. Также хорошо видно, что их адсорбция на третьем пылевом пике, который почти полностью уже покинул адсорбер, также весьма эффективна.

#### 5. ВЫВОДЫ

Полученные данные показывают, что адсорбция йода и некоторых других элементов в фильтрах АЭС происходит преимущественно на пылевых массах, которые образуются в фильтрующем слое и распределены в нем в виде максимумов плотности, которые со временем перемещаются от поверхности в глубину адсорбера. Такой характер переноса приводит к тому, что на определенной стадии накопленные элементы (барий, стронций) могут быть выброшены в атмосферу. В то же время видно, что йод преимущественно накапливается в первом пылевом максимуме, который не сдвигается под действием воздушного потока, и поэтому йод оказывается малоподвижным и не покидает фильтра. Выявленные особенности адсорбции элементов на пылевых структурах важны для оценки и выбора конструкции адсорберов с улучшенными характеристиками.

Авторы благодарят П.А. Хаймовича за помощь в фотографировании пылевых объектов.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Л.И. Федорова, П.Я. Полтинин, Л.В. Карнацевич, М.А. Хажмурадов, С.О. Лысцов, В.В. Тесленко, Ю.Л. Коврижкин. Влияние усадки и механического износа адсорбента на аэродинамические параметры угольных адсорберов типа АУ-1500 систем вентиляции АЭС // *Атомная энергия*. 1999, т. 82, в. 4, с. 279–283.
2. И.М. Неклюдов, Л.И. Федорова, П.Я. Полтинин, Л.В. Карнацевич. Влияние особенностей накопления пылевой угольной фракции в слое адсорбента на рост аэродинамического сопротивления угольных йодных фильтров систем вентиляции АЭС // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»* (84). 2003, №6, с. 65–70.
3. О.П. Леденев, И.М. Неклюдов, П.Я. Полтинин, Л.И. Федорова. Особенности процессов переноса и структурообразования с участием дисперсной угольной фракции в адсорбционных фильтрах систем вентиляции АЭС // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»* (86). 2005, № 3, с. 115–121.
4. А. Кейлеманс. *Хроматография газов*. М.: ИИЛ, 1959, 320 с.
5. Д.А. Колышкин, К.К. Михайлова. *Активные угли: Справочник*. Л.: «Химия», 1972, с. 57.
6. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Механика*. М.: «Наука», 1965, с. 204.
7. Н.Б. Урьев. Физико-химическая динамика дисперсных систем // *Успехи химии*. 2004, т. 79, № 1, с. 39–62.
8. Н.Р. Dikiy et al. // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Ядерно-физические исследования»* (37). 2001, №1, с. 26–35.
9. В.С. Коган. *Адсорбенты для криовакуума: Аналитический обзор*. ХФТИ 81-2. Харьков, 1981 с. 71.

## ОСОБЛИВОСТІ ПРОСТОРОВОГО РОЗПОДІЛУ ПИЛЄВИХ МАС І АДСОРБОВАНИХ ХІМІЧНИХ ЕЛЕМЕНТІВ У ФІЛЬТРАХ АЕС

*О.П. Леденьов, І.М. Неклюдов, П.Я. Полтинін, Л.І. Фьодорова*

З'ясовано особливості адсорбції з повітря хімічних елементів і їхніх ізотопів у вугільних фільтрах АУ-1500 атомних електростанцій. Показано, що неоднорідний розподіл елементів усередині фільтра, знайдене раніше методом гамма-активаційного аналізу, добре корелює з особливостями розподілу пилових мас, дослідженого авторами. Ця обставина вказує на важливу роль пилових фракцій адсорбенту, що перебувають у фільтрі, в адсорбції елементів і їхніх ізотопів. Розглянуто фізичні причини, що приводять до такого характеру взаємодії переміщуємих повітрям елементів з пиловими скупченнями. Проведено аналіз впливу цих процесів на працездатність фільтрів і утримання накопиченого матеріалу.

## FEATURES OF A SPATIAL DISTRIBUTION OF DUST MASSES AND ADSORBED CHEMICAL ELEMENTS IN FILTERS OF APP

*O.P. Ledenyov, I.M. Neklyudov, P.Ya. Poltinin, L.I. Fedorova*

The features of an adsorption from air of chemical elements and their isotopes in carbon filters AU-1500 of atomic power plants are clarified. It is shown, that the nonuniform allocation of elements inside a filter retrieved earlier by a method of a gamma-activation analysis, well correlates with features of allocation of dust masses researched by the authors. This circumstance indicates the important role of dust fractions of adsorbent placed in a filter, in an adsorption of elements and their isotopes. The physical reasons resulting in to such character of interaction by portable air elements with dust accumulations surveyed. The analysis of influence of these processes on serviceability of filters and saving of the accumulated material.