УДК 53.072:504.5

С. П. Бабенко, А. В. Бадьин

О ФУНКЦИИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ РАДИУСОВ АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ УРАНИЛ-ФТОРИДА В УСЛОВИЯХ ПОВСЕДНЕВНОЙ ПРОИЗВОДСТВЕННОЙ ДЕЯТЕЛЬНОСТИ НА СУБЛИМАТНЫХ И ОБОГАТИТЕЛЬНЫХ ПРЕДПРИЯТИЯХ АТОМНОЙ ПРОМЫШЛЕННОСТИ

Показано, что если в процессе формирования аэрозольных систем, сопровождающем гидролиз гексафторида урана в воздухе рабочих помещений обогатительных заводов, возникает логнормальное распределение радиусов аэрозольных частиц, то оно сохраняется и в том случае, когда частицы уже вовлечены в процесс оседания на производственные поверхности в гравитационном поле Земли. Это доказано для случая, когда гексафторид урана в воздухе рабочего помещения появляется в процессе повседневной производственной деятельности. Решено уравнение непрерывности для системы газовых и аэрозольных продуктов гидролиза, вычислена удельная (по радиусам аэрозольных частиц) концентрация молекул интересующего вещества в составе аэрозольных частиц радиуса r и функция распределения радиусов аэрозольных частиц. Сделано заключение относительно вида функции распределения при различных значениях коэффициента воздухообмена в производственном помещении.

Известны случаи аварийного выброса гексафторида урана на обогатительных и сублиматных заводах предприятий атомной промышленности [1], а также то, что на таких предприятиях в рабочих помещениях имеется малый фон гексафторида урана, связанный с технологическим процессом его использования [2]. Появление в воздухе гексафторида урана сопровождается взаимодействием его с влагой воздуха, приводящим к его гидролизу. Некоторые продукты гидролиза (уранил-фторид UO_2F_2 и фтористый водород HF) нуклеируют [3, 4] и образуют аэрозоли. Эти аэрозольные частицы являются носителями атомов таких токсичных веществ, как уран и фтор. Поэтому, попадая в организм человека, аэрозольные частицы наносят ему вред [2, 6]. Коэффициент прохождения аэрозольных частиц через дыхательную систему определяется размером аэрозольных частиц [7]. Эта зависимость существенно упрощается для систем аэрозольных частиц, распределение размеров которых описывается логарифмически-нормальным законом. В рекомендациях Международного комитета радиационной защиты (МКРЗ) [7] приводится графическая зависимость коэффициента задержки аэрозольных частиц от активностного медианного аэродинамического диаметра (АМАД), определяющегося среднегеометрическим радиусом (одним из основных параметров логарифмически нормального закона распределения радиусов аэрозольных частиц) и плотностью вещества аэрозольных частиц. Поэтому знание аналитического выражения для функции распределения размеров аэрозольных частиц и установление характера этого закона имеет большое практическое значение.

В работе [5] описана методика нахождения функции распределения радиусов аэрозольных частиц уранил-фторида (UO_2F_2), образующихся в процессе нуклеации молекул этого вещества. Функция распределения получена сопоставлением расчетных значений концентрации атомов урана в составе всех аэрозольных частиц со значениями, измеренными в рамках эксперимента, моделирующего аварийную ситуацию. Показано, что функция распределения описывается логарифмически нормальным законом

$$g(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\beta_g)}\frac{1}{r}\exp\left(-\left(\frac{\ln(r)-\ln(r_g)}{\ln(\beta_g)\cdot\sqrt{2}}\right)^2\right),$$

$$G(r) = \frac{1}{2}\left(1+\operatorname{erf}\left(\frac{\ln(r)-\ln(r_g)}{\ln(\beta_g)\cdot\sqrt{2}}\right)\right).$$

Здесь g — дифференциальная функция распределения; G — интегральная функция распределения; $r_g = 2{,}744\cdot 10^{-6}$ м — среднегеометрический радиус аэрозольных частиц; $\beta_g = 2{,}18$ — коэффициент статистического разброса (безразмерная величина); erf — функция ошибок ($\operatorname{erf}(u) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int\limits_0^u e^{-\tilde{u}^2}d\tilde{u}$). Далее, наряду с выражениями $g(r)$, $G(r)$ (с переменной r), будут использованы выражения $\bar{g}(r, r_g, \beta_g)$, $\bar{G}(r, r_g, \beta_g)$ (с переменными r, r_g, β_g):

$$\bar{g}(r, r_g, \beta_g) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\beta_g)}\frac{1}{r}\exp\left(-\left(\frac{\ln(r)-\ln(r_g)}{\ln(\beta_g)\cdot\sqrt{2}}\right)^2\right),$$
$$\bar{G}(r, r_g, \beta_g) = \frac{1}{2}\left(1+\operatorname{erf}\left(\frac{\ln(r)-\ln(r_g)}{\ln(\beta_g)\cdot\sqrt{2}}\right)\right),$$

$$r\in(0,+\infty),\ r_g\in(0,+\infty),\ \beta_g\in(1,+\infty).$$

Сразу же после рождения аэрозольных частиц они включаются в процесс оседания под действием силы тяжести, испытывая при этом сопротивление среды, а также в процесс вывода их системой воздухообмена в производственном помещении.

В данной работе получена функция распределения радиусов аэрозольных частиц уранил-фторида, вовлеченных в условиях повседневной производственной деятельности в перечисленные процессы. Показано, что в отсутствие воздухообмена она по-прежнему описывается логарифмически нормальным законом, а наличие воздухообмена нарушает этот закон. Ниже показан вывод этого положения.

В основе вывода лежит система уравнений непрерывности для газов и аэрозольных частиц, появление которых является следствием наличия гексафторида урана в воздухе рабочих помещений и его гидролиза [8]. Для газов эта система имеет вид

$$\sum_{m=1}^{N} a_{k,m} n_m + F_k(z) = 0,\ k = \overline{1, N}. \tag{1}$$

Здесь z — координата, отсчитываемая по вертикали от пола к потолку рабочего помещения (z — параметр, $z \in (0, h)$, h — высота рабочего помещения); $n_k(z)$ — концентрация молекул вещества с номером k на высоте z; $a_{k,m}$ — коэффициенты, описывающие процессы гидролиза, нуклеации и воздухообмена; $F_k(z)$ — объемная плотность мощности внешних источников молекул вещества с номером k, т.е. число частиц, рождающихся в единицу времени в единичном объеме в окрестности выделенной точки. При решении уравнения (1) принималось, что $F_k(z) = F_k$.

Система уравнений непрерывности для аэрозолей имеет вид

$$v(r)\frac{\partial}{\partial z} n' - K n' + g(r) \sum_{m=1}^{N} b_m n_m(z) = 0, \quad z \in (0, h); \tag{2}$$

$$n'\big|_{z=h} = 0. \tag{3}$$

Здесь r — радиус аэрозольной частицы (r — параметр, $r \in (0, +\infty)$); z — координата, отсчитываемая по вертикали от пола к потолку рабочего помещения; h — высота рабочего помещения; $n'(r, z)$ — удельная (по радиусам аэрозольных частиц) концентрация молекул интересующего нас вещества в составе аэрозольных частиц радиуса r на высоте z; $v(r)$ — скорость дрейфа аэрозольной частицы радиуса r; K — кратность воздухообмена; g — дифференциальная функция распределения радиусов аэрозольных частиц, образующихся в процессе нуклеации (иными словами, $g(r)$ — плотность вероятности того, что в процессе нуклеации молекула интересующего вещества попадет в аэрозольную частицу радиуса r); b_m — коэффициенты в законе процесса нуклеации.

Далее используются следующие обозначения: $n(r, z)$ — концентрация молекул интересующего вещества в составе аэрозольных частиц с радиусами $\tilde{r} \leqslant r$ на высоте z ($n(r, z) = \int\limits_0^r d\tilde{r} \cdot n'(\tilde{r}, z)$); $n_\infty(z)$ —

концентрация молекул интересующего вещества в составе всех аэрозольных частиц на высоте z ($n_\infty(z) = \lim\limits_{r\to+\infty} n(r,z) = \int\limits_0^{+\infty} d\tilde{r}\cdot n'(\tilde{r},z)$), а также определения дифференциальной и интегральной функций распределения радиусов аэрозольных частиц на высоте z:

$$g_1(r,z) = \frac{n'(r,z)}{n_\infty(z)}, \quad G_1(r,z) = \frac{n(r,z)}{n_\infty(z)}.$$

Решая уравнение (2) для аэрозолей методом вариации постоянной, получим

$$n'(r,z) = \frac{g(r)}{v(r)}(h-z)\sum_{m=1}^{N} b_m n_m, \quad K=0;$$
$$n'(r,z) = \frac{g(r)}{K}\left(1-e^{-\frac{K}{v(r)}(h-z)}\right)\sum_{m=1}^{N} b_m n_m, \quad K\neq 0.$$

Здесь $F_k(z) = F_k$. В рассматриваемом случае, когда аэрозольные частицы движутся под действием силы тяжести и силы сопротивления среды, скорость аэрозольной частицы радиуса r описывается выражением $v(r) = \gamma r^2$. Вычислим отношение $\frac{g(r)}{v(r)}$:

$$\frac{g(r)}{v(r)} = \frac{1}{\gamma r^2}\frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\beta_g)}\frac{1}{r}\exp\left(-\left(\frac{\ln(r)-\ln(r_g)}{\ln(\beta_g)\cdot\sqrt{2}}\right)^2\right) =$$
$$= \frac{1}{\gamma}\frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\beta_g)}\frac{1}{r}\exp\left(-2\ln(r) - \frac{(\ln(r))^2 - 2\ln(r)\ln(r_g) + (\ln(r_g))^2}{(\ln(\beta_g))^2\, 2}\right) =$$
$$=\frac{1}{\gamma}\frac{1}{\sqrt{2\pi}\ln(\beta_g)}\frac{1}{r}\exp\left(-\frac{(\ln(r))^2 - 2\ln(r)\ln(r_g) + (\ln(r_g))^2 + 4\ln(r)(\ln(\beta_g))^2}{(\ln(\beta_g))^2\, 2}\right) =$$
$$= \frac{1}{\gamma}\frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\beta_g)}\frac{1}{r}\exp\left(-\frac{(\ln(r))^2 - 2\ln(r)\left(\ln(r_g) - 2(\ln(\beta_g))^2\right) + (\ln(r_g))^2}{(\ln(\beta_g))^2\, 2}\right) =$$
$$= \frac{1}{\gamma}\frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\beta_g)}\frac{1}{r}\times$$
$$\times\exp\left(-\frac{\left(\ln(r) - \left(\ln(r_g) - 2(\ln(\beta_g))^2\right)\right)^2 - \left(\ln(r_g) - 2(\ln(\beta_g))^2\right)^2 + (\ln(r_g))^2}{(\ln(\beta_g))^2\, 2}\right) =$$
$$= \frac{1}{\gamma}\exp\left(\frac{\left(\ln(r_g) - 2(\ln(\beta_g))^2\right)^2 - (\ln(r_g))^2}{(\ln(\beta_g))^2\, 2}\right)\times$$
$$\times\frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\beta_g)}\frac{1}{r}\exp\left(-\left(\frac{\ln(r) - \left(\ln(r_g) - 2(\ln(\beta_g))^2\right)}{\ln(\beta_g)\cdot\sqrt{2}}\right)^2\right) =$$

$$= \frac{1}{\gamma}\exp\left(-2\ln\left(r_g\right) + 2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right) \times$$

$$\times \frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln\left(\beta_g\right)}\frac{1}{r}\exp\left(-\left(\frac{\ln\left(r\right) - \left(\ln\left(r_g\right) - 2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)}{\ln\left(\beta_g\right)\cdot\sqrt{2}}\right)^2\right) =$$

$$= \frac{\exp\left(2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)}{\gamma r_g^2}\frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln\left(\beta_g\right)}\frac{1}{r}\exp\left(-\left(\frac{\ln\left(r\right) - \left(\ln\left(r_g\right) - 2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)}{\ln\left(\beta_g\right)\cdot\sqrt{2}}\right)^2\right).$$

Обозначим, $\tilde{r}_g = r_g\exp\left(-2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)$. Тогда выражение для $\dfrac{g(r)}{v(r)}$ примет вид

$$\frac{g(r)}{v(r)} = \frac{\exp\left(2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)}{\gamma r_g^2}\bar{g}\left(r, \tilde{r}_g, \beta_g\right),$$

т.е. это дифференциальная функция распределения, соответствующая $r_g = \tilde{r}_g$. Соответственно, выражение для $n'(r,z)$ примет вид

$$n'(r,z) = \frac{\exp\left(2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)}{\gamma r_g^2}\bar{g}\left(r, \tilde{r}_g, \beta_g\right)\left(h-z\right)\sum_{m=1}^{N} b_m n_m,\ \ K = 0,$$

$$n'(r,z) = \frac{g(r)}{K}\left(1 - e^{-\frac{K}{v(r)}(h-z)}\right)\sum_{m=1}^{N} b_m n_m,\ \ K \neq 0.$$

Используя выражение для $n'(r,z)$, можно найти выражения для $n(r,z)$, $n_\infty(z)$ в виде

$$n(r,z) = \int\limits_0^r d\tilde{r}\cdot n'(\tilde{r},z) =$$

$$= \frac{\exp\left(2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)}{\gamma r_g^2}\bar{G}\left(r, \tilde{r}_g\right)\left(h-z\right)\sum_{m=1}^{N} b_m n_m,\ \ K = 0;$$

$$n(r,z) = \int\limits_0^r d\tilde{r}\cdot n'(\tilde{r},z) = \frac{\sum\limits_{m=1}^{N} b_m n_m}{K}\times$$

$$\times\left(G(r) - \frac{1}{\sqrt{\pi}}\int\limits_{-\infty}^{\frac{\ln(r)-\ln(r_g)}{\ln(\beta_g)\cdot\sqrt{2}}} dx\cdot\exp\left(-x^2 - \frac{K(h-z)}{\gamma r_g^2}\exp\left(-x\ln\left(\beta_g\right)2\sqrt{2}\right)\right)\right),$$

$$K \neq 0, \tag{4}$$

где

$$\bar{G}(r, r_g, \beta_g) = \frac{1}{2}\left(1 + \operatorname{erf}\left(\frac{\ln(r) - \ln(r_g)}{\ln(\beta_g)\sqrt{2}}\right)\right),$$

$$r \in (0, +\infty), \quad r_g \in (0, +\infty), \quad \beta_g \in (1, +\infty), \text{ —}$$

есть интегральная функция распределения, соответствующая $r_g = \tilde{r}_g$. При $r \to \infty$ можно получить следующие выражения для $n_\infty(z)$:

$$n_\infty(z) = \lim_{r\to+\infty} n(r,z) = \frac{\exp\left(2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)}{\gamma r_g^2}(h - z)\sum_{m=1}^{N} b_m n_m$$

при $K = 0$;

$$n_\infty(z) = \lim_{r\to+\infty} n(r,z)\frac{\sum\limits_{m=1}^{N} b_m n_m}{K}\times \tag{5}$$

$$\times\left(1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} dx \cdot \exp\left(-x^2 - \frac{K(h-z)}{\gamma r_g^2}\exp\left(-x\ln\left(\beta_g\right)2\cdot\sqrt{2}\right)\right)\right)$$

при $K \neq 0$.

Наконец, по определению функций распределения радиусов аэрозольных частиц, можно получить следующие выражения для $g_1(r, z)$, $G_1(r, z)$:

$$g_1(r,z) = \frac{n'(r,z)}{n_\infty(z)} = \bar{g}\left(r, \tilde{r}_g, \beta_g\right),\ K = 0,$$

$$g_1(r,z) = \frac{n'(r,z)}{n_\infty(z)} =$$

$$= \frac{g(r)\left(1 - e^{-\frac{K}{v(r)}(h-z)}\right)}{1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}}\int\limits_{-\infty}^{+\infty} dx \cdot \exp\left(-x^2 - \frac{K(h-z)}{\gamma r_g^2}\exp\left(-x\ln\left(\beta_g\right)2\cdot\sqrt{2}\right)\right)},$$

$K \neq 0$;

$$G_1(r,z) = \frac{n(r,z)}{n_\infty(z)} = \bar{G}\left(r, \tilde{r}_g, \beta_g\right),\ K = 0;$$

$$G_1(r,z) = \frac{n(r,z)}{n_\infty(z)} =$$

$$
= \frac{G(r) - \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int\limits_{-\infty}^{\frac{\ln(r)-\ln(r_g)}{\ln(\beta_g)\cdot\sqrt{2}}} dx \cdot \exp\left(-x^2 - \frac{K(h-z)}{\gamma r_g^2} \exp\left(-x \ln(\beta_g)\, 2 \cdot \sqrt{2}\right)\right)}{1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int\limits_{-\infty}^{+\infty} dx \cdot \exp\left(-x^2 - \frac{K(h-z)}{\gamma r_g^2} \exp\left(-x \ln(\beta_g)\, 2 \cdot \sqrt{2}\right)\right)},
$$

$K \neq 0$.

Видно, что при отсутствии воздухообмена функции $g_1(r,z)$, $G_1(r,z)$ фактически не зависят от высоты z и описываются логарифмически нормальным законом со среднегеометрическим радиусом $\tilde{r}_g = r_g \exp\left(-2\left(\ln\left(\beta_g\right)\right)^2\right)$ и коэффициентом статистического разброса β_g. С другой стороны, видно, что при наличии воздухообмена функции $g_1(r,z)$, $G_1(r,z)$ зависят от высоты z и закон распределения не подчиняется логарифмически нормальному.

Имея аналитические выражения для функций $g_1(r,z)$, $G_1(r,z)$ и анализируя степень их отклонения от логарифмически нормального закона при разных z и K, можно решать вопрос об использовании той или иной методики определения коэффициента проникновения внутрь организма вещества, вдыхаемого в составе аэрозольных продуктов гидролиза гексафторида урана [7].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Д э в и с Л. Терроризм и насилие. Террор и катастрофы / Пер. с англ. – Смоленск: Русич. – 1998. – 496 с.
2. Г а с т е в а Г. Н., Б а д ь и н В. И., М о л о к а н о в А. А., М о р д а ш е в а В. В. Клиническая токсикология химических соединений урана при хронической экспозиции // Радиационная медицина. – 2001. – Т. 2. – С. 369–389.
3. Б а д ь и н В. И., П а р х о м е н к о Г. М. Гидролиз газообразного гексафторида урана в воздухе / Отчет предприятия п.я. М-5122 и п.я. В-2343. – 1975. – 76 с. ЦНИИАТОМИНФОРМ, ИК № М 34559, 1976.
4. U r a n i u m Hexafluoride — Safe Handling, Processing, and Transporting. Conference Proceedings. May 24–26. – Oak Ridge, Tennessee. – 1988.
5. Б а б е н к о С. П., Б а д ь и н А. В. Методы определения функции распределения радиуса аэрозольных частиц уранилфторида // Атомная энергия. – 2005. – Т. 99. – № 5. – С. 353–358.
6. И в а н о в В. И. Курс дозиметрии: Учебник для вузов. – М.: Энергоатомиздат. – 1988. – 400 с.
7. ICRP Publication 66. Human respiratory Tract Model for Radiological Protection // Annals of the ICRP. – 1994. – Т. 24. – № 4.
8. Б а б е н к о С. П., Б а д ь и н А. В. Математическое описание процессов рождения и оседания продуктов гидролиза газообразного гексафторида урана UF_6 в полупространстве // Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Сер. “Естественные науки”. – 2005. – № 4. – С. 122–132.

Статья поступила в редакцию 11.12.2006