

放射性气溶胶捕集技术的初步研究

赵云龙, 郭俊民, 谢 波, 宋 涛, 刘晓亚*

中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900

摘要:放射性气溶胶的捕集技术是气溶胶放化分析的前提, 对其进行研究有利于促进气溶胶放化分析的发展。本工作通过使用不同滤材的组合, 构建气溶胶过滤器, 研究放化分析的气溶胶取样技术, 实验结果表明: 金属烧结毡与高效滤材进行组合后, 其捕集效率达到 98% 以上, 利用爆竹爆炸产生的气溶胶, 进行模拟取样实验, 在 30 min 内可获得 100 mg 以上的 0.5 μm 以上粒径的气溶胶, 满足放化气溶胶取样的要求。

关键词:气溶胶; 高效滤材; 金属烧结毡; 捕集; 过滤效率

中图分类号: O648.18 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2016)02-0091-06

doi: 10.7538/hhx.2016.38.02.0091

Preliminary Exploration of Aerosol Capturing

ZHAO Yun-long, GUO Jun-min, XIE Bo, SONG Tao, LIU Xiao-ya*

Institute of Nuclear Physics and Chemistry,
China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China

Abstract: The technology of radioactive aerosol capturing was the premise of radiochemical analysis of aerosol, helped to promote the development of aerosol radiochemical analysis. In this paper, by using a combination of different filtering materials and the construction of aerosol filter, radiochemical analysis aerosol sampling technique was discussed. Experiments show that: by the combination of sintered metal felt and high efficiency material, the efficiency can reach above 98%. The aerosol was generated by explosions of firecrackers for simulating sampling experiment. It is obtained that more than 100 mg particle size of aerosol 0.5 μm within 30 min, which fully meet the discharge of radiochemical analysis aerosol sampling requirements.

Key words: aerosol; efficient filtering material; firing felt; acquiring; filtering efficiency

对于特定环境下放射性气溶胶的放射化学分析, 必须首先获取气溶胶, 因此, 气溶胶的捕集技术成为放化分析的必要手段。最常用的气溶胶采样技术是过滤, 该技术用滤膜收集空气中的气溶胶粒子。过滤具有灵活、简易和经济等特点, 目前

已成为最广泛使用的气溶胶采样技术^[1-4]。除此之外, 粒子撞击器的分级采样技术也有被应用, 它利用气溶胶粒子的惯性进行拦截采样, 但要求通过的气体流速恒定, 目前在恒流采样和微生物采样方面均有所报道^[5-7]。但这两种采样技术随着

收稿日期: 2014-08-20; 修订日期: 2015-03-24

作者简介: 赵云龙(1988—), 男, 黑龙江鸡西人, 硕士研究生, 核技术及应用专业

* 通信联系人: 刘晓亚(1966—), 男, 四川渠县大竹县人, 博士, 研究员, 从事放化诊断技术研究, E-mail: lxylh@foxmail.com

放化分析采样目的不同而要求也有所不同。放化分析领域的气溶胶取样是对特定区域的放射性气溶胶进行采样,需要尽可能获取足量和全部粒径范围的气溶胶,这样放化分析结果才有代表性。目前,采用滤膜收集是最为可行的方法,其它诸如粒子撞击器的分级采样、液体载带、物理吸附、静电沉积等方法,由于粒径收集范围窄、或现场工程实施难度较大、甚至不可行等因素不适合进行特定环境下的放射性气溶胶采样。过去的气溶胶过滤取样是利用玻璃纤维网团容尘,使用平均孔隙大小为 5 μm 的金属烧结毡进行拦截,其过滤所得的气溶胶粒子粒径较大,取样量不够,且漏掉了大部分小粒径的气溶胶。鉴于此种状况,本工作拟设计专门的实验和组合滤材的过滤器结构,对气溶胶捕集进行初步探索。

1 过滤器设计

根据放射性气溶胶取样要求,滤材应具有较高的收集效率以及抗高压冲击的能力,同时利于气溶胶粒子溶解、分析或从滤材上清洗下来。在此之前,曾利用高效滤材、金属烧结毡滤材分别进行了单独的过滤效率、最易穿透曲线等实验,基本结论是:高效滤材虽然效率高,但其强度不够,容易被气流贯穿使得滤材破损,不适合捕集取样;金属烧结毡强度高,抗冲击,但其效率偏低,达不到放化分析的取样要求。因此考虑高效滤材与金属烧结毡组合使用,凸显其优势,避免其缺陷。过滤器结构设计示于图 1。

2 实验部分

2.1 设备与材料

HA-8603 型高效低阻力硼硅酸盐玻璃纤维滤材,平均孔隙大小为 0.3 μm ,效率为 98.35%; H3398 高效低阻力玻璃纤维滤材,效率为 99.84%,平均孔隙大小为 0.5 μm ;金属纤维烧结

毡,平均孔隙大小为 5 μm ;均由河南核净洁净技术有限公司提供。双层 2 μm 金属颗粒烧结毡与双层 0.5 μm 金属颗粒烧结毡,平均孔隙大小分别为 2 μm 和 0.5 μm ,由南京高谦功能材料科技有限公司生产。

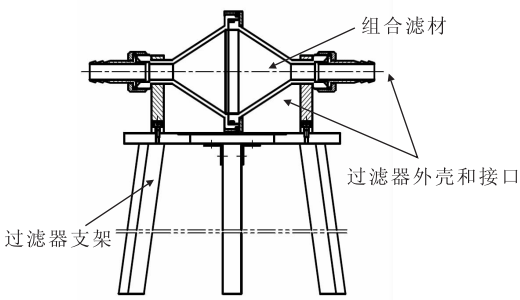


图 1 气溶胶取样过滤器结构
Fig. 1 Structure of aerosol sampling filter

SK-P10C3 型气溶胶发生器,苏州尚科洁净技术有限公司生产;微差计 CYG1002,宝鸡秦明传感器有限公司生产;SMPS3936 型 TSI 气溶胶粒径谱仪,美国 TSI 公司生产;D16C 型真空泵,天津莱宝生产;SPAMS 0525 型单颗粒气溶胶飞行时间质谱仪,广州禾信分析仪器有限公司生产;取样实验用过滤器由本课题组自行设计加工。

2.2 实验方式与流程

首先是气溶胶获取效率测试:利用气溶胶发生器产生气溶胶,经过过滤器,利用微差计监测过滤器的压差变化,通过气溶胶粒径谱仪对过滤前后的气溶胶粒子谱进行测试,获得其效率和穿透曲线,实验系统示意图示于图 2。如图 2 所示,检测过滤器过滤前的气溶胶粒子谱时,TSI 气溶胶粒径谱仪直接与气溶胶发生器连接,然后在气溶胶发生器与 TSI 气溶胶粒径谱仪之间联接过滤器和微差计,获得过滤器过滤后的气溶胶粒子谱,

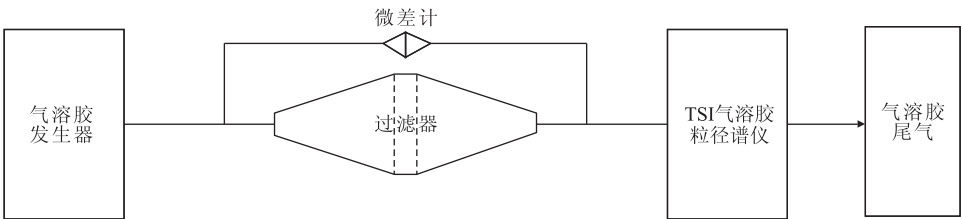


图 2 效率测试实验系统示意图
Fig. 2 Schematic diagram of the experimental system efficiency test

TSI 气溶胶粒径谱仪可测量范围为 $0.03\sim1\ \mu\text{m}$ 区间气溶胶粒子浓度和粒径分布,仪器未给出分析的不确定度数据,主要是由于随着测试次数的增加,滤材拦截气溶胶量也增加,导致效率不断提高,直到滤材穿透或堵塞,因此,过滤效率测试只测一次。分析谱仪一次效率测试的不确定度,可由两部分合成:一是粒子谱的统计涨落引起的不确定度;二是通过 TSI 气溶胶粒径谱仪粒子计数器的流量不确定度引起的不确定度。粒子谱的统计涨落可根据标准不确定度评定方法确定,其相对不确定度为 $10^{-6}\sim10^{-3}$,取最大值为 0.1% 。

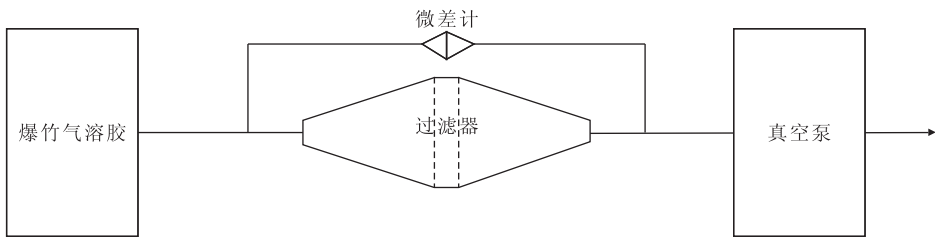


图 3 爆竹气溶胶取样实验系统示意图
Fig. 3 Diagram of cracker aerosol sampling test

3 结果与讨论

3.1 爆竹气溶胶粒径分布

气溶胶取样实验前,需要了解爆竹气溶胶的粒径(d)分布,爆竹气溶胶的粒径检测在广州禾信分析仪器有限公司完成,用单颗粒气溶胶飞行时间质谱仪进行分析,检测结果示于图 4。从图 4 可以看出,爆竹气溶胶粒径主要分布在 $0.25\sim1.0\ \mu\text{m}$,峰值位于 $0.5\ \mu\text{m}$ 处。

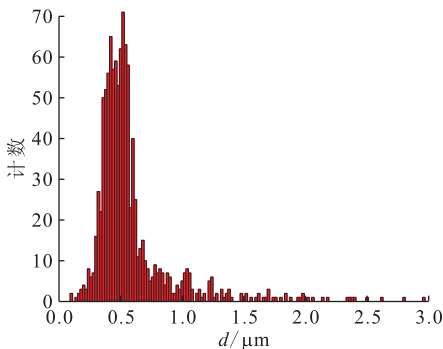


图 4 爆竹气溶胶的粒径分布
Fig. 4 Particle diameter distribution of cracker aerosol

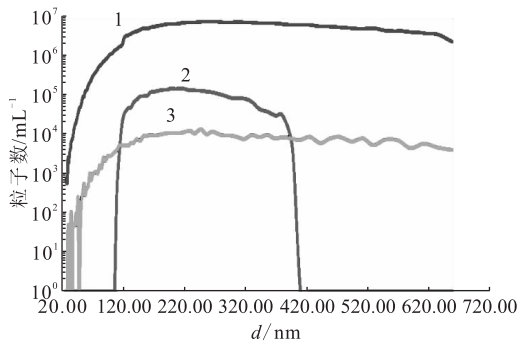
TSI 气溶胶粒径谱仪自带的流量计精度为 2 级,由不确定度为 1.5% 的皂泡流量计校准,相对不确定度取 2.00% ,合成为相对不确定度为 2.00% 。

完成效率测试后,利用爆竹爆炸产生气溶胶,对组合滤材结构进行取样实验,实验系统示意图示于图 3。如图 3 所示,爆竹在 $3\ \text{m}^3$ 的铁皮桶中爆炸,产生气溶胶。过滤器通过两段内径 $10\ \text{mm}$ 的软管分别与铁皮桶和真空泵连接。取样前对组合滤材进行称量,爆竹爆炸后启动真空泵进行取样,取样停止后,取出组合滤材进行称量。

3.2 效率测试

两种高效滤材与金属纤维烧结毡组合的过滤前后的粒子谱示于图 5,通过粒子谱可获得过滤前后的粒子总数,用它们相比得出过滤效率。从图 5 可以看出,两种组合滤材均显示了很高的过滤效率,这可以从穿透实验结果得到证实。

单层 HA-8603 的最易透过粒径为 $30\ \text{nm}$,效率为 98.35% 。在其底部加上 $5\ \mu\text{m}$ 的金属纤维



1——未过滤的原谱,
2—— $5\ \mu\text{m}$ 金属纤维烧结毡+H3398 高效滤材,
3—— $5\ \mu\text{m}$ 金属纤维烧结毡+HA-8603 高效滤材
图 5 两种组合过滤前后粒子谱

Fig. 5 Particle diameter spectrums of before and after combination filtering material

烧结毡后效率升至 99.84%，其最易穿透曲线示于图 6。从图 6 中难以看出最易透过粒径。随着过滤次数的增加，过滤器两端的压差由 2.4 kPa 上升至 4.5 kPa(数据见表 1)，并且其效率由 99.84% 上升至 99.97%，说明滤材组合后穿透现象明显减弱，效率呈上升的趋势，但压差增加显著，阻力增大，表明有堵塞现象，即容尘量不足。

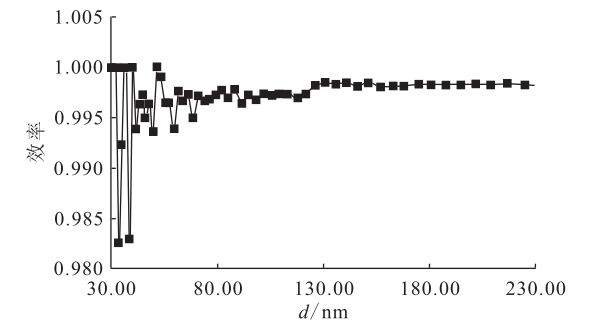


图 6 5 μm 金属纤维烧结毡与

HA-8603 组合的过滤效率与粒径的关系

Fig. 6 Relationship of 5 μm metal fiber sintered felt and HA-8603 combination filter efficiency and particle size

表 1 5 μm 金属纤维烧结毡与

HA-8603 组合滤材压降的变化趋势

Table 1 Change trend of 5 μm metal fiber sintered felt in combination with HA-8603 filter pressure drop

过滤次数	过滤器压降/kPa
一次过滤	2.4
二次过滤	3.5
三次过滤	4.0
四次过滤	4.5

单层 H3398 的最易透过粒径为 160 nm，效率为 98%。在其底部加上 5 μm 的金属纤维烧结毡后效率升至 98.9%，其最易穿透曲线示于图 7。从图 7 不难看出，最易透过粒径位于 160~210 nm 之间，随着过滤次数的增加，过滤器两端的压差由 1.5 kPa 上升至 2.7 kPa(数据见表 2)，其效率无明显变化。说明组合后没有穿透的现象，但压差呈增加趋势，阻力也有增大趋势，但相较 HA-8603 其压力上升趋势要平缓得多。总之，滤材的组合设计思路是成功的，能完成取样任务。虽然 HA-8603 比 H3398 效率高，但其压降增加太快。比较分析，H3398 气溶胶综合取样性能优于 HA-8603。效果

是否如此，还需要进行实际的取样实验。

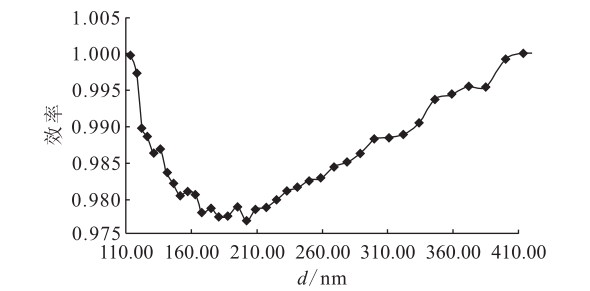


图 7 5 μm 金属纤维烧结毡与

H3398 组合的过滤效率与粒径的关系

Fig. 7 Relationship between 5 μm metal fiber sintered felt in combination with H3398 filter efficiency and particle size

表 2 5 μm 金属纤维烧结毡与

H3398 组合滤材压降的变化趋势

Table 2 Change trend of 5 μm metal fiber sintered felt in combination with H3398 filter pressure drop

过滤次数	过滤器压降/kPa
一次过滤	1.5
二次过滤	2.2
三次过滤	2.4
四次过滤	2.5
五次过滤	2.7

3.3 爆竹取样实验

用 10 000 枚爆竹爆炸产生气溶胶，进行两轮取样实验，第一轮用金属烧结毡与 HA-8603 的两种组合结构进行了二次取样，第二轮用金属烧结毡与 H3398 两种组合结构进行了三次取样，所用金属烧结毡分别有双层 2 μm 金属颗粒烧结毡与双层 0.5 μm 金属颗粒烧结毡，结果列于表 3。从表 3 可以看出，5 次取样实验取样量都在 100 mg 以上，高效滤材没有出现穿透的情况，完全满足放化分析的需要，但取样容尘量有限。为了进行对比，利用玻璃纤维网加 5 μm 金属纤维烧结毡的原气溶胶取样器，在同样条件下进行取样，取样量为 37 mg，远低于本工作设计的取样器的取样量，说明采用本工作设计的取样器其取样效率得到很大提高，且粒径捕集范围达到 0.3 μm 以上，更有利于气溶胶放化分析。5 次实验的过滤器压差和流量的变化关系示于图 8。

表 3 各组合型滤材取样结果
Table 3 Sampling results for combinations of filtering material

实验次数	组合结构	滤材	过滤前质量/g	过滤后质量/g	过滤量/g
第一轮实验 A	A1:双层 2 μm 金属颗粒烧结毡+HA-8603 高效滤材	双层 2 μm 金属颗粒烧结毡	89.070 0	89.100 0	0.030 1
		HA-8603 高效滤材	0.608 6	0.862 0	0.253 4 0.283 5 ¹⁾
	A2:双层 0.5 μm 金属颗粒烧结毡+HA-8603 高效滤材	双层 0.5 μm 金属颗粒烧结毡	135.764 0	135.766 0	0.002 2
		HA-8603 高效滤材	0.659 3	0.774 0	0.114 7 0.116 9 ¹⁾
	B1:双层 2 μm 金属颗粒烧结毡+H3398 高效滤材	双层 2 μm 金属颗粒烧结毡	89.094 8	89.496 0	0.401 2
		H3398 高效滤材	0.698 8	0.874 3	0.175 5 0.576 7 ¹⁾
第二轮实验 B	B2:双层 0.5 μm 金属颗粒烧结毡+H3398 高效滤材	双层 0.5 μm 金属颗粒烧结毡	135.766 5	135.833 0	0.066 8
		H3398 高效滤材	0.750 5	0.822 0	0.071 1 0.137 9 ¹⁾
	B3:双层 0.5 μm 金属颗粒烧结毡+H3398 高效滤材	双层 0.5 μm 金属颗粒烧结毡	101.659 0	101.911 0	0.252 2
		H3398 高效滤材	1.528 9	1.537 0	0.008 1 0.260 3 ¹⁾

注:1) 合计

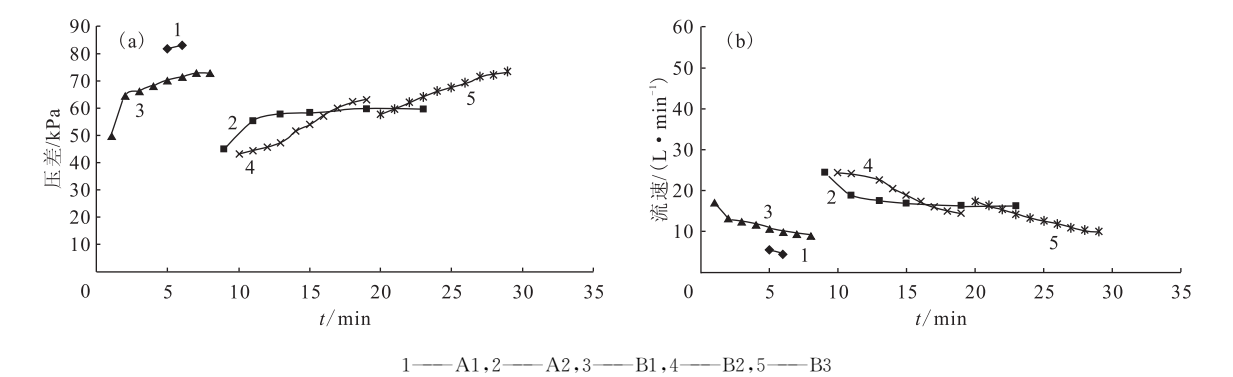


图 8 组合滤材压差(a)和流量(b)的变化关系
Fig. 8 Curves in pressure drop(a) and flow(b) of combination filtering material

如图 8 所示,由于 HA-8603 高效滤材的 A1 组合过滤效率很高,取样开始后,6 min 内过滤器流量很快就降到 5.5 L/min,压差升高到 83 kPa,获取了高达约 284 mg 的气溶胶。A2 组合 14 min 内即获取了约 117 mg 的气溶胶。H3398 高效滤材组合实验结果与 HA-8603 的组合类似,在 30 min 内均可获得 100 mg 以上的粒径大于 0.5 μm 的气溶胶,满足放化气溶胶取样的要求。H3398 高效滤材组合是目前最优的气溶胶取样的滤材组合结构。

综上所述,单层的高效滤材在过滤时很容易穿透,导致失效,与金属颗粒烧结毡组合以后,没有出现穿透现象,过滤效率较高。分析原因是:高效滤材由于有了高强度金属烧结毡作为底衬,高

效滤材在气流的冲击下不会变形,受到的应力很小,因此,不会被穿透。另外,实验发现,随着过滤次数(时间)的增加,两种组合的阻力也随之增加,这与文献[2]、[4]的结果一致,同时效率没有降低,表明有堵塞现象。这是因为高效滤材的容尘量有限,其过滤精度很高,过滤高浓度的气溶胶很快会堵塞其过滤通道,导致压降增大,长时间过滤会导致气路不畅,但对于专用气溶胶捕集取样,在其完全堵塞前,已经能取得足够的气溶胶,目前最优的组合结构是 H3398 高效滤材与金属颗粒烧结毡的组合。

4 结 论

原气溶胶取样器采用玻璃纤维网加 $5\ \mu\text{m}$ 金属纤维烧结毡设计,只能够拦截 $5\ \mu\text{m}$ 以上的气溶胶,过滤效率低,取样量小于 50 mg。本工作设计的过滤器能够拦截 $0.3\ \mu\text{m}$ 或 $0.5\ \mu\text{m}$ 以上的气溶胶,效率可达 98% 以上,取样量大于 100 mg。表明高效滤材与金属颗粒烧结毡组合式的设计思想是成功的,满足气溶胶捕集取样的要求。虽然组合式滤材的过滤结构有堵塞现象,但堵塞前所

获取的容尘量能满足气溶胶放化分析的要求,目前最优的组合结构是 H3398 高效滤材与金属颗粒烧结毡的组合。

参考文献:

- [1] [美]保罗 A. 巴伦,克劳斯·戴维克. 气溶胶测量原理、技术及应用[M]. 白志鹏,杨灿,等,译. 北京:化学工业出版社,2007:63-65.
- [2] 吴艳敏,王旭辉,刘龙波,等. 大流量气溶胶取样滤材的动态性能研究[J]. 试验与研究,2006,29(2): 81-86.
- [3] 吴艳敏,王旭辉,刘龙波,等. 高流速下气溶胶取样滤材的性能测试[J]. 辐射防护,2009,129(1):13-17.
- [4] 张自禄,王旭辉,夏兵,等. 气溶胶取样滤材收集效率和压降的测定[J]. 试验与研究,2000,23(2):37-41.
- [5] 李庆伟,肖凯涛. 气溶胶采样过程中流量控制技术[J]. 火工品,2008(3):44-47.
- [6] 李涛. 空气微生物采样及发展趋势[J]. 中国卫生检验杂志,2003,13(5):538-539.
- [7] 郝樊华,刘晓亚,肖成建,等. 爆轰条件下的气溶胶粒径分布及Ag质量分数与粒径的关系[J]. 核技术,2009,32(5):343-346.