

负载型多分散气溶胶在管道内的传输规律

张积桥, 张生栋, 陶武清, 毛国淑, 丁有钱

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

摘要:放射性气溶胶的传输一直是倍受关注的环境问题。为研究放射性气溶胶在管道内的传输规律, 首先自制了能够产生稳定的、多分散气溶胶的发生器。主要考察了稀释气流速(5~25 L/min)、气溶胶颗粒粒径(多分散体系)及固体颗粒密度(土壤、石英砂)对气溶胶在管道内传输的影响。即考察了粒径多分散的石英砂、土壤颗粒形成的气溶胶及表面负载 Ag 的石英砂颗粒模拟负载型放射性气溶胶, 在不同稀释气流速作用下进入管道内的传输, 针对每一节管道内的沉积物进行收集分析, 从而得到气溶胶在管道内的传输及沉降规律。研究表明: 密闭管道内, 在一定流速范围内, 沉积物最高频度粒径随着管道距离的增长而先增大后减小; 小粒径的颗粒在传输过程中自重沉降, 且由于布朗运动吸附在大粒径颗粒物表面加速其沉降速率, 即减小了其在管道内的传输距离; 表面负载 Ag 的石英砂颗粒形成的气溶胶随着稀释气吹扫导致 Ag 和石英砂颗粒之间不同程度的分凝, 气流速率越大, 分凝现象越明显。

关键词:气溶胶; 多分散; 传输及沉降; 气溶胶发生器; 分凝

中图分类号: TL941.2 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2020)04-0285-07

doi: 10.7538/hhx.2020.YX.2019006

Complicated Multi-Particles-Dispersed Aerosol Transportation in Tube

ZHANG Ji-qiao, ZHANG Sheng-dong, TAO Wu-qing,
MAO Guo-shu, DING You-qian

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(126), Beijing 102413, China

Abstract: Transportation of radioactive aerosol is a concerned environment problem. In order to study the law of radioactive aerosol transportation in tube, an aerosol generator which can produce stable, multi-disperse and high concentration aerosol was set up. The main factors such as the gas flow rate(5-25 L/min), the diameter of aerosol-particles(multi-dispersed particles), and the density of the solid-particles(soil and SiO₂) were considered. Three kinds of aerosol respectively formed by multi-particles-dispersed soil system, multi-particles-dispersed SiO₂ system and Ag coated multi-particles-dispersed SiO₂ system (imitating radioactive aerosol), were taken into the tube under different gas flow rate. Then samples of each section in the tube were analyzed, from that, the law of the transportation and deposition of aerosol in the tube can be deduced. Gravity and the particle size are the key factors, especially. At first, the particle sizes of sedimentation increase along the tube, then decrease. The small particles, which adsorbed on the surface of the large ones, fasten the

sedimentation of the particles, and shorten the transportation distance. The Ag-SiO₂ sample data show that the fractionation of Ag from the SiO₂-carrier is more obvious as the gas flow rate is faster.

Key words: aerosol; multi-disperse; transportation and deposition; aerosol generator; fraction

核设施运行中一旦有放射性核素释放,不可避免会对环境及人类造成辐射影响^[1-2],因此日常安全检测尤其重要。泄露的放射性核素会附着于其他颗粒物表面形成气溶胶进行携带式传输,传输过程中沉降颗粒物样品中的分凝与颗粒物自身特性及传输速率的相关性有待研究。Pu等元素气溶胶特性行为和取样过滤技术的实验室研究中,通常使用贵金属或稀土元素的气溶胶以及同位素气溶胶进行模拟示踪、爆炸或非爆炸式气溶胶发生器模拟产生气溶胶^[3-8]。爆炸产生气溶胶对实验安全和气溶胶取样要求很高,发生气溶胶的重现性欠佳。迄今国内外对气溶胶的研究有很多^[9-12],但针对负载型多分散气溶胶的传输及沉降研究比较少。

文献[5-6]设计加工的投料式(无进料装置)流化床气溶胶发生器,结构简单,操作方便,且粒度分布比较稳定。借助气体吹扫形成气溶胶,在一定范围内可行,但在其它载体颗粒粒度范围以及气体吹扫速率下,造成气溶胶的不稳定性和对载体颗粒的选择性,因此在后续的研究中无法实现量化。清华大学余涛等^[7]基于Sinclair-LaMer法所建立的热蒸发负载型气溶胶制备方法,过程繁琐,引入参数多。美国TSI系列的3400A负载型气溶胶发生装置,采用链条传输样品进入气仓,然后用青铜珠摩擦破碎因静电团聚的颗粒,从而会导致原负载样品在形成均匀气溶胶时被破坏。管道内传输过程中,气溶胶主要受重力沉降和布朗凝并影响。气溶胶尺度分布、颗粒浓度分布是气溶胶发生器的重要指标,因此在设计气溶胶发生装置过程中主要考虑产生气溶胶的均匀性、持续性。

本工作拟开展负载型多分散气溶胶发生装置研制工作,并在此基础上研究气溶胶在管道内的传输规律。

1 实验部分

1.1 仪器和样品

气溶胶发生器,自制;Quick 440 A去离子风机,苏州快克锡焊股份有限公司;FRITSCH P13

破碎机、FRITSCH P5球磨机,德国飞驰;HELOS/RODOS激光粒度仪,德国新帕泰克;TSI 3321扫描电迁移率粒径谱仪,美国TSI;NexION 350X等离子体质谱仪(ICP-MS),美国Perkin-Elmer;BP211D电子天平,感量 10^{-5} g,德国Satorius。

AgNO₃、HNO₃,分析纯,中国国药集团化学试剂有限公司;土壤源自北京市房山区阎村农田;石英砂购于北京伊诺凯科技有限公司。

载体物料制备过程:采用破碎机及球磨机将干燥后的土壤和石英砂样品研磨为多分散的粉末体系。

负载型多分散物料制备过程:首先将AgNO₃溶解于水溶液中配制稀浓度的银溶液,然后与石英砂均匀搅拌,放置于抽风柜内阴干即可。

测量样品指标:将多分散载体样品及负载型多分散物料进行气溶胶样品的传输实验,在传输系统内不同位置分别取样。

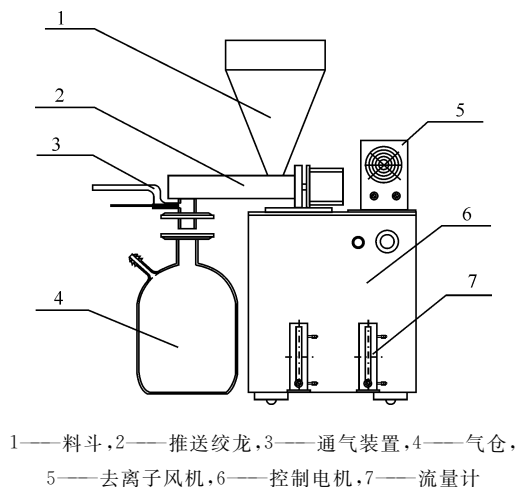
1.2 实验方法

在搭建了能够产生稳定、多分散气溶胶的发生器基础上,对比考察了多分散固体颗粒不同密度(土壤、石英砂)以及表面负载Ag的石英砂颗粒形成的模拟放射性气溶胶,在不同稀释气流速(5~25 L/min)作用下进入管道内传输后,针对每一节管道内的沉积物进行收集分析,得到气溶胶在管道内的传输及沉降规律。

2 自制气溶胶发生器

流化床气溶胶发生器是一种有效的以固体粉末为原料的气溶胶发生器。气溶胶发生装置示于图1。如图1所示,该装置由料斗、推送绞龙、通气装置、控制电机等组成。在料斗内装入用破碎机粉体化的石英砂或土壤物料,然后打开电机开关及通气装置,选择合适的轴承转速也就是绞龙传送速率,在步进电机的推送以及通气装置对物料吹扫下,颗粒物形成气溶胶,再在稀释气体的作用下,气溶胶在气仓内混合均匀,然后进入传输系统,收集管道内的沉积样品对其进行分析。物料的输入量主要取决于推送绞龙的转动推送频率、

轴承的旋转速率和轴承上螺纹的齿间距离。因此,需要优化轴承转速、轴承上螺纹的齿间距离以及齿高控制进料速率。



1——料斗,2——推送绞龙,3——通气装置,4——气仓,
5——去离子风机,6——控制电机,7——流量计
图1 负载型气溶胶的发生装置

Fig. 1 Complicated multi-particles-dispersed aerosol instrument

装置进气气路分为两路:一路为分散气(气路管道细,压力高),另一路为稀释气体(气路管道粗,压力小),它们的流量由流量计控制、显示。

3 结果与讨论

3.1 气溶胶稳定性

进料器有三种机制,即进料量的控制机制、粉体的均匀化机制和进料机制。当前不同进料机制列于表1。摩擦起电是一种接触后又分离、造成正负电荷不平衡的起电方式。静电是在不断的接触、分离中产生的,即摩擦起电实质上是动能影响了其原子分布的均匀性,从而产生静电。本实验中的源项物料在研磨以及被推送绞龙推送过程中不可避免地产生静电,所以为消除形成气溶胶过程中的静电,包括进料和吹扫的过程中产生的静电,使用去离子风机在气仓附近工作,通过该方式中和流经静电。

表1 流化床气溶胶发生器的进料器的机制

Table 1 Mechanisms of input of aerosol-instruments

测试粉体	进料量的控制方式	均匀化方式	进料方式
道路尘	刮板的速率	搅拌	刮板
烟灰	三通电磁阀的通断	烟灰和床珠混合	气力
灰尘	筛网的振动频率	振动	气力

采用破碎机及球磨机将土壤和石英砂研磨为多分散的体系,其粒径分布示于图2。如图2所示,其中粒径小于10.3 μm的石英砂物料占90%,粒径小于17.3 μm的土壤物料占90%。

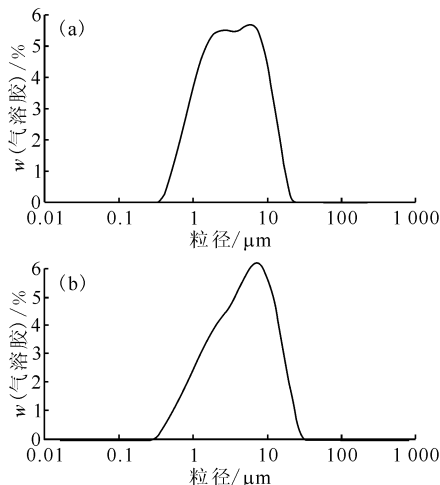


图2 石英砂(a)和土壤(b)样品颗粒度分布

Fig. 2 Particle size distribution of SiO₂ (a) and soil (b)

图3为气溶胶质量分数(w (气溶胶))和粒度分布随气流速率的变化曲线。由图3可得:用推送绞龙为进料动力(气力)的流化床气溶胶发生器可以产生浓度和粒度分布比较稳定的气溶胶;发生器的分散气流速从5 L/min增加到25 L/min,气仓内气溶胶的粒子累计浓度分布基本不变。

发生器分散气流速为10 L/min保持不变,开机后相同时间间隔取样,然后分析样品中不同粒径粒子的含量。图4为土壤样品气溶胶浓度和粒度分布随时间(t)的变化。如图4所示,开机5 min内各个粒径分段粒子浓度有所变化,而开机5 min后,气溶胶粒子粒度分布大体保持稳定。研究表明了料斗、推送绞龙、通气装置、气仓等组成的气溶胶发生器能产生多分散气溶胶,其性能稳定。

3.2 气溶胶传输管道设计

影响传输的因素有很多,本工作主要考察了管道直径、气溶胶颗粒大小等的影响。采用Depo2001a模拟软件对单一粒径颗粒物在8、38 mm管道内的传输、沉降进行模拟,计算不同管径及不同气体流速下的沉积曲线,结果示于图5、图6。图5、图6结果表明:粒径大于20 μm的颗粒在管道内传输3 m处基本沉降完全。图5中,对于同一管径中,在同一稀释气流速下,随着粒径

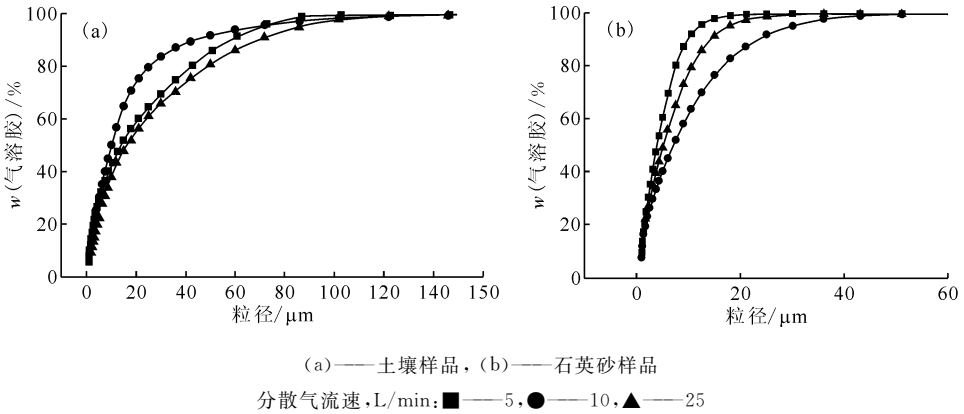


图3 气溶胶浓度和粒度分布随气流速率的变化曲线

Fig. 3 Variation of concentration and size of aerosol particles with gas flow rates

的增大,完全沉降距离越短,粒径为 $5\ \mu\text{m}$ 的粒子,在管道内 $8\ \text{m}$ 处沉降率(某处沉降率=某处气溶胶累积沉积质量/某时间段内气溶胶总质量 $\times 100\%$)为 $20\%\sim 50\%$;粒径为 $10\ \mu\text{m}$ 的粒子, $8\ \text{m}$ 处沉降率为 $80\%\sim 100\%$ 。比较图 5 和图 6 而言,同一稀释气流速下,粒径越大的颗粒沉降距离越小。图 6 中也可以看出图 5 所示的规律。粒径为 $1\ \mu\text{m}$ 时,颗粒基本不沉降,传输距离较远。基于本实验中的颗粒粒径在 $20\ \mu\text{m}$ 以内,且颗粒样品粒径主要分布在 $10\ \mu\text{m}$ 附近。随着稀释气流速的增大,沉降距离有不同程度的增大。因此选择管道长度为 $12\ \text{m}$ 。

溶胶,然后利用不同的稀释气将气溶胶输入到传输管道内,在不同稀释气流速下,气溶胶在管道内传输过程中,沉降样品的粒径分布不同,定点取样(每 $0.5\ \text{m}$ 收集样品送检)可以得到它的粒径分布。分散气流速一定时,调节稀释气流速为 $5\sim 25\ \text{L/min}$ (选择层流流速 $15\ \text{L/min}$,湍流流速 $25\ \text{L/min}$)。由于石英砂和土壤密度不同,对它们在管道内的传输沉降也是有影响的。为考察传输过程中分凝现象,对比相同条件下载体沉降与携带 Ag 的载体沉降,分析样品中 Ag 的含量。

图 7 为不同稀释气流速下土壤样品在管道内沉降的质量分布。由图 7 可以看出,在稀释气流速为 $5\ \text{L/min}$ 时,传输距离 $7\ \text{m}$ 处质量变化趋于稳定,然后突然减小,是因为该流速下,颗粒先团聚,到达一定粒径时沉降,在传输距离为 $8\ \text{m}$ 时,基本沉降完全。土壤样品稀释气流速为 $5\ \text{L/min}$ 时,前 $7\ \text{m}$ 为平稳传输,每节管道内的样品质量接近,而当稀释气流速为 $15\ \text{L/min}$ 和 $25\ \text{L/min}$ 时,在管道内的前 $2\ \text{m}$ 气溶胶沉降很快。吹扫 $30\ \text{min}$ 后收集管内沉积样品,粒径分布为多分散,土壤样品出现团聚现象明显。在稀释气流速增大时大颗粒先沉降,小颗粒边沉降边团聚。这是由于土壤颗粒含有大量正负离子,在传输过程中不断的接触、分离产生的静电对其影响很大。传输过程中,土壤比石英砂密度低,则相同粒径的土壤比石英砂所受重力小,凝并作用亦会造成传输规律差异。

图 8 为稀释气流速为 $15\ \text{L/min}$ 时土壤样品在 $8\ \text{mm}$ 管道内传输的粒径分布。由图 8 可以看出,随着管道的增长,样品的主粒径呈先增大、后减小的规律。因无其它外部因素的引入,多分散

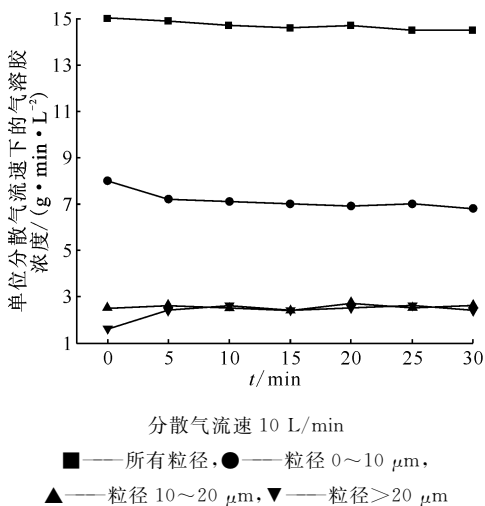


图4 土壤样品气溶胶浓度和粒度分布随时间的变化

Fig. 4 Variation of concentration and size of soil aerosol particles with time

3.3 颗粒样品传输

在同一流速的分散气作用下产生高浓度的气

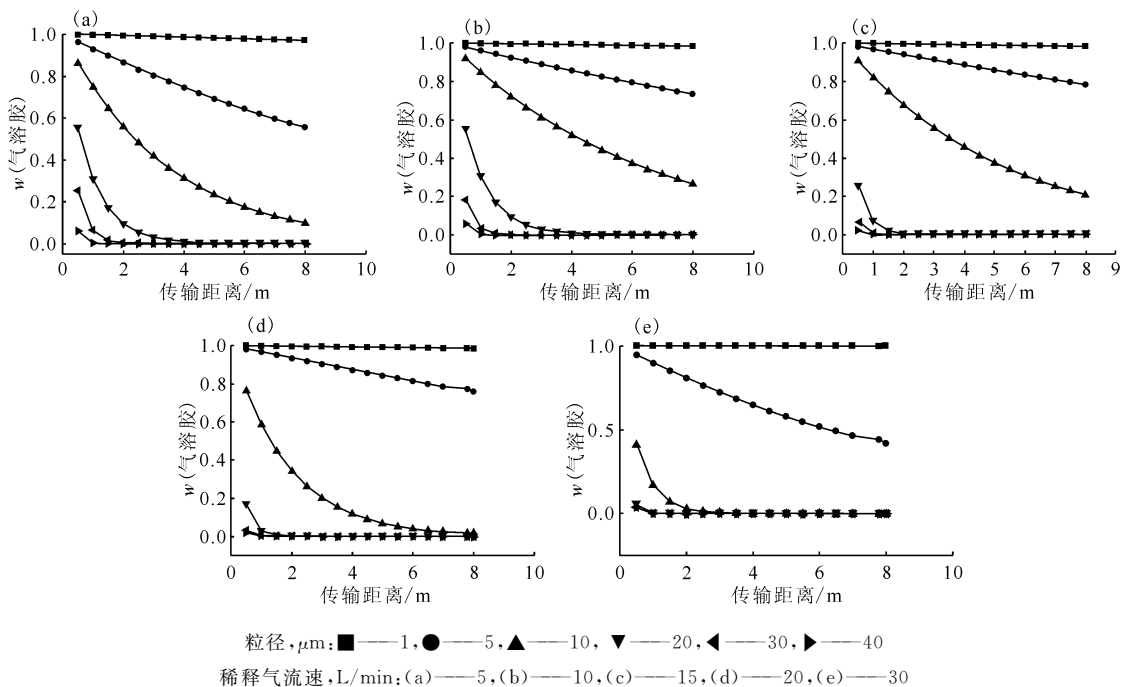


图 5 不同粒径和稀释气流速下管径 8 mm 直管中的气溶胶沉降曲线

Fig. 5 Deposition curves in 8 mm tube with different particle size and flow rates

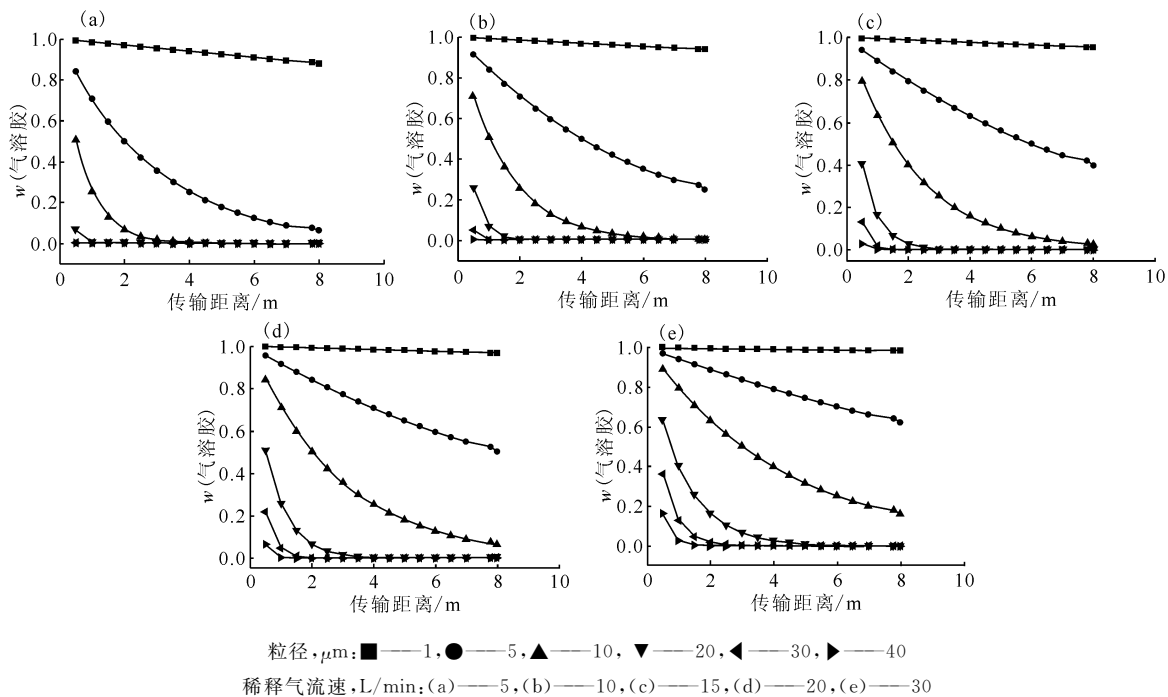


图 6 不同粒径和稀释气流速下管径 38 mm 直管中的气溶胶沉降曲线

Fig. 6 Deposition curves in 38 mm tube with different particle size and flow rates

的源项体系在传输管道内的沉降规律为部分大颗粒先沉降,小颗粒继续传输;因布朗运动小粒径颗粒吸附在大颗粒表面,随着气溶胶在管道内传输的继续,大颗粒及小颗粒在自身作用下沉降,小颗粒吸附在大颗粒上加速了颗粒的沉降。

对比研究了石英砂在该系统内的传输规律,结果示于图 9、10。由图 9、10 可以看出,稀释气流速为 15 L/min 时沉降规律符合模拟计算规律,而流速为 25 L/min 时,颗粒密度的变化在该流速下形成湍流运动,沉降过程中,质量分布不具有规

律性,且颗粒粒径变化不明显。稀释气流速为 15 L/min 时,石英砂样品在前 4 m 的传输过程中沉降很快,每节管道内的样品质量衰减快,4 m 后则相对平稳,基本沉积完全。而当稀释气流速为 25 L/min 时,气溶胶固相载体在管道内沉降变化,因湍流运动造成的沉积物质量有增也有减,且粒径无规律。但所收集样品的粒径分布为多分散且频度最高的粒径分布呈先增大、后减小的规律,且石英砂样品团聚现象不明显,是因为 SiO₂ 表面吸附的离子少,传输过程中产生的静电影响较小。

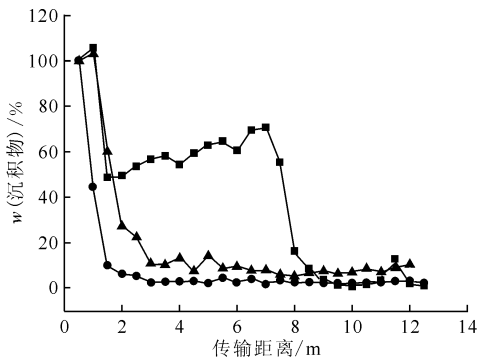


图 7 不同稀释气流速下土壤样品在 8 mm 管道内沉降的质量分布
Fig. 7 Deposition curves of soil in 8 mm tube with different gas flow rates

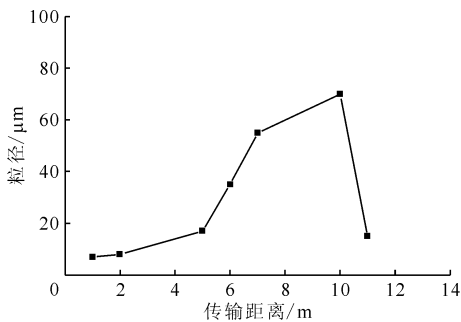


图 8 稀释气流速为 15 L/min 时土壤样品在 8 mm 管道内传输的粒径分布
Fig. 8 Size distribution of soil samples in 8 mm tube with 15 L/min gas flow rate

由图 10 粒径分布曲线图可以看出,随着管道的增长,样品的主粒径呈现先增大、后减小的规律。同样因无其他外部因素的引入,多分散的源项体系在传输管道内的沉降规律为部分大颗粒先沉降,小颗粒继续传输;因布朗运动小粒径颗粒吸附在大颗粒表面,随着气溶胶在管道内传输的继

续,大颗粒及小粒径颗粒在自身作用下沉降,小颗粒吸附在大颗粒上加速了颗粒的沉降。

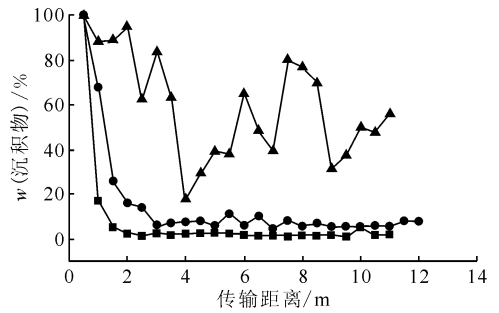


图 9 不同稀释气流速下石英砂样品在 8 mm 管道内沉降的质量分布
Fig. 9 Deposition curves of SiO₂ samples in 8 mm tube with different gas flow rates

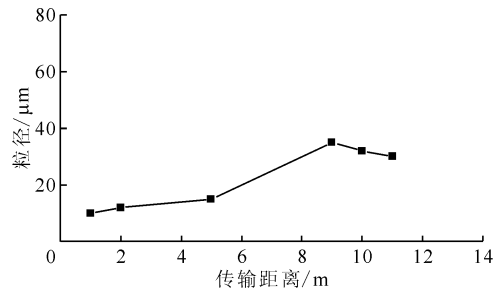


图 10 稀释气流速为 15 L/min 时石英砂样品在 8 mm 管道内传输的粒径分布
Fig. 10 Size distribution of SiO₂ samples in 8 mm tube with 15 L/min gas flow rate

3.4 负载 Ag 的颗粒样品传输

将 Ag 负载在颗粒样品的表面模拟负载 Pu 样品气溶胶在管道内的传输及沉降。将表面均匀负载了 Ag 的石英砂多分散样品进行气溶胶传输、沉降实验,然后用稀硝酸溶液洗涤收集的沉积样品,采用 ICP-MS 检测 Ag,对比原负载样品中 Ag 的理论含量与测得的 Ag 含量,结果示于图 11。由图 11 可以得出,稀释气流速为 5 L/min 时,Ag 含量差值(在考察的距离内,从 Ag-SiO₂ 负载颗粒中分凝出的银颗粒累积质量与原复合物银含量的差值)为 3.5%,且在零分凝线两侧波动;而当稀释气流速增加为 15 L/min 时,Ag 含量总差为 23.6%,均在零分凝线以下,说明分凝一直存在且更显著。研究表明,当增大气流速率时,Ag 和石英砂分凝效果更明显,Ag 较载体传输更远。

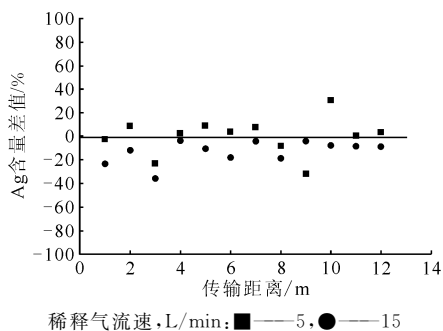


图 11 银-石英砂负载型多分散气溶胶在 8 mm 管道内的传输距离-银含量曲线

Fig. 11 Variation of Ag concentration of Ag-SiO₂ aerosol samples in 8 mm tube with distance

4 结 论

搭建了能够产生稳定气溶胶的发生器装置,为后续实验奠定了基础;考察了影响因素对气溶胶传输的影响:

(1) 当传输为层流时,沉积物频度最高的粒径分布呈现先增大、后减小的规律;土壤传输过程中的团聚效应较石英砂更明显;当传输为湍流时,质量和粒径不具有规律性;层流范围内所得沉降数据与 Dep2001a 模拟数据吻合;该规律可对后续研究提供数据、技术支持;

(2) 所选 AgNO₃ 模拟放射性气溶胶传输性能,操作简单,便于检测;由 Ag-载体的模拟气溶胶传输可得 Ag 和载体之间存在分凝效应,气流速率越大,分凝现象越明显。

参考文献:

[1] 卢正永. 气溶胶科学引论[M]. 北京:原子能出版社, 1999.

- [2] 王玉民,沈慧炯,庄心哲,等. 二氧化钚 (²³⁸PuO₂、²³⁹PuO₂) 事故性扩散及其粒度特性和吸入危害[J]. 职业卫生与应急救援, 2001, 19(4): 171-173.
- [3] 谢朝阳,罗锦瑞. 炸药爆炸条件下钚气溶胶扩散研究综述[J]. 安全与环境工程, 2007, 14(1): 122-126.
- [4] 袁伟,陈军,左莉,等. 爆炸条件下钚气溶胶反应变化[J]. 世界核地质科学, 2013, 30(1): 56-60.
- [5] 粟永阳,朱凤蓉,刘龙波,等. 用于放射性纳米气溶胶模拟的准单分散气溶胶发生器的研制[J]. 辐射防护, 2014, 34(9): 310-329.
- [6] 刘龙波,刘蜀疆,刘红杰,等. 振筛进料流化床气溶胶发生器性能的初步研究[J]. 过程工程学报, 2004, 8: 876-879.
- [7] 余涛,张振中,江锋,等. 蒸发冷凝法亚微米气溶胶发生装置的最佳运行参数[J]. 清华大学学报(自然科学版), 2010, 50(3): 426-429.
- [8] Olson C, Landsberger S, Braisted J. Neutron activation analysis of aerosolized sodium chloride to simulate size-fractionation of plutonium in a glove box[J]. J Radioanal Nucl Chem, 2008, 276(1): 157-160.
- [9] Hayden J A. Size fractionation methods: measuring plutonium in respirable dust [J]. Science, 1978, 202: 753-754.
- [10] Hayden J A. Characterization of environmental plutonium by nuclear techniques[C]. Atmosphere-Surface Exchange of Particulate and Gaseous Pollutants. Richland, Washington, USA, 1974: 648.
- [11] Heft R E, Steele W A. Procedures for the systematic separation and analysis of radioactive particles from nuclear detonations, UCRL-50428[R]. US: Lawrence Radiation Laboratory, 1986.
- [12] 甘宗煜,李伟平,曾可,等. Stokes 沉降法则在污染土壤小颗粒湿法分级中的应用[J]. 辐射防护, 2014, 34(4): 240-243.