

На правах рукописи

Таранина Ольга Александровна



**ОБОСНОВАНИЕ АДСОРБЦИОННОГО МЕТОДА
КОНТРОЛЯ ПОЛИАРОМАТИЧЕСКИХ УГЛЕВОДОРОДОВ
В ПРОМЫШЛЕННЫХ ВЫБРОСАХ ПРОИЗВОДСТВА
АЛЮМИНИЯ**

*Специальность 05.11.13 – Приборы и методы контроля
природной среды, веществ, материалов и изделий*

**Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук**

Санкт-Петербург – 2020

Работа выполнена в федеральном государственном бюджетном образовательном учреждении высшего образования «Санкт-Петербургский горный университет»

Научный руководитель:

доктор технических наук, доцент

Волкодаева Марина Владимировна

Официальные оппоненты:

Холодкевич Сергей Викторович

доктор технических наук, федеральное государственное бюджетное учреждение науки Санкт-Петербургский институт информатики и автоматизации РАН (СПИИРАН), главный научный сотрудник;

Андрианова Мария Юрьевна

кандидат технических наук, доцент, федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Санкт-Петербургский государственный политехнический университет Петра Великого», Высшая школа гидротехнического и энергетического строительства Инженерно-строительного института, доцент.

Ведущая организация – акционерное общество «ОПТЭК», г. Санкт-Петербург.

Защита диссертации состоится 30 сентября 2020 г. в 14:00 на заседании диссертационного совета ГУ 212.224.14 Горного университета по адресу: 199106, г. Санкт-Петербург, 21-я линия, д.2, ауд. № 1171а.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Горного университета и на сайте www.spmi.ru.

Автореферат разослан 29 июля 2020 г.

УЧЕНЫЙ СЕКРЕТАРЬ
диссертационного совета



КОПТЕВА
Александра Владимировна

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования

Отбор проб является одним из важных этапов аналитического контроля загрязняющих веществ в промышленных выбросах техногенных объектов. Выбор метода пробоотбора может оказать решающее влияние на достоверность полученных результатов и привести к искажению результатов локального мониторинга выбросов загрязняющих веществ промышленными предприятиями, который проводится с целью получения информации о влиянии источников загрязнения на окружающую среду и снижения негативного воздействия техногенных объектов на окружающую среду.

Одними из наиболее опасных веществ, образующихся при производствах топливно-энергетической, химической, нефтехимической, металлургической промышленности являются полиароматические углеводороды (ПАУ). ПАУ относятся к группе приоритетных стойких органических загрязнителей и повышенный интерес к данным веществам связан с их высокой токсичностью, мутагенными и канцерогенными свойствами. Одним из источников ПАУ в атмосферном воздухе является алюминиевая промышленность. Основными источниками выбросов смолистых веществ в атмосферу на алюминиевом заводе являются аэрационные фонари и дымовые трубы корпусов электролиза, работающих с применением технологии Содерберг.

В связи с тем, что в последние годы возрастает интерес к дифференциации выбросов ПАУ с целью идентификации источников поступления полициклических ароматических углеводородов в объекты окружающей среды, то большее внимание уделяется контролю приоритетных ПАУ в промышленных выбросах.

Значительный вклад в разработку методов пробоотбора ПАУ внесли такие зарубежные исследователи как A.J. Peters, D. Grosjean, K. Andersson, T. F. Bidleman, Lee J.J. Среди отечественных исследователей проблемой контроля смолистых веществ в отходящих газах производства алюминия и изучением сорбционных свойств оксида алюминия по отношению к смолистым веществам

занимались сотрудники ЛОС ВАМИ: Г.И. Ильинская, В.Н. Белохвостова, В.С. Буркат, Ю.Б. Алексеев а также сотрудники Свердловского научно-исследовательского института гигиены труда и профзаболеваний, в частности А.И. Кузьминых. Изучением метода пробоотбора ПАУ с использованием оксида алюминия занимались П.П. Дикун, В.А. Корягин, К.В.Февелев, В.Ю. Безруких, а также Olav Bjorseth, Conrad Krohn, Svein Torgersen, Per Einar Fjeldstad.

Работа соответствует следующим областям исследования паспорта специальности 05.11.13 Приборы и методы контроля природной среды, веществ, материалов и изделий в части области исследования: п. 2: «Разработка и оптимизация методов расчета и проектирования элементов, средств, приборов и систем аналитического и неразрушающего контроля с учетом особенностей объектов контроля», п. 4: «Разработка методического, технического, приборного и информационного обеспечения для локальных, региональных и глобальных систем экологического мониторинга природных и техногенных объектов».

Объект исследования – экологический контроль выбросов полиароматических углеводородов.

Предмет исследования - аналитический метод контроля

ПАУ в промышленных выбросах производства алюминия, основанный на адсорбционном методе отбора проб ПАУ.

Идея работы: Теоретически обосновать, спроектировать, разработать и апробировать пробоотборное устройство для контроля концентрации ПАУ на различных источниках загрязнения атмосферы производства алюминия, основанное на применении оксида алюминия в качестве адсорбента, позволяющее контролировать концентрацию ПАУ, находящиеся в газообразном состоянии в промышленных выбросах, для обеспечения объективной и достоверной оценки промышленных выбросов ПАУ.

Цели и задачи

Разработка метода контроля ПАУ в промышленных выбросах различных источников загрязнения атмосферы алюминиевых заводов, отличающегося тем, что для контроля ПАУ, находящиеся в газообразном состоянии применяется адсорбционный метод отбора проб на основе использования оксида алюминия.

В связи с поставленной целью необходимо решить следующие задачи:

- Проанализировать существующие методы аналитического контроля ПАУ в выбросах техногенных объектов;
- Проанализировать существующие методики измерений концентрации ПАУ в промышленных выбросах;
- Изучить фазовое разделение ПАУ в выбросах алюминиевого производства;
- Исследовать процесс динамической сорбции для выбранного адсорбента в зависимости от режима отбора проб;
- Разработать пробоотборное устройство ПАУ.

Научная новизна:

- С целью обоснования метода контроля ПАУ в промышленных выбросах выявлены закономерности разделения ПАУ между твердой и газовой фазой в зависимости от температуры газовой смеси на источниках загрязнения атмосферы российских заводов по производству алюминия. Предложено использовать уравнение Ямасаки-Панкоу для определения коэффициента разделения ПАУ между твердой и газовой фазами в зависимости от температуры и концентрации взвешенных частиц в газовой смеси.

- Экспериментально определены значения динамической сорбции оксида алюминия по отношению к ПАУ, позволяющие использовать оксид алюминия в качестве адсорбента при контроле ПАУ на источниках загрязнения атмосферы производства алюминия при объемном расходе 15 л/мин в течении 20 мин.

Теоретическая и практическая значимость работы:

Установлено, что для описания разделения ПАУ между твердой и газовой фазами в промышленных выбросах с учетом общей запыленности газовой смеси и температуры можно применять уравнение Ямасаки –Панкоу.

Исследована сорбционная способность оксида алюминия относительно ПАУ при разных режимах отбора проб. Разработано пробоотборное устройство для контроля ПАУ в промышленных выбросах. Результаты работы являются основой методики

измерения концентрации ПАУ в промышленных выбросах производства алюминия.

Методология и методы исследования. В ходе работы были проведены теоретические и экспериментальные исследования. Решение поставленных задач выполнялось с использованием методов химического анализа: высокоэффективной жидкостной хроматографии и флуоресцентной спектрометрии; метода математического моделирования движения газопылевого потока; изучение адсорбционных характеристик проводилось на основании полученных выходных кривых сорбции.

Научные положения, выносимые на защиту:

1 Метод аналитического контроля промышленных выбросов ПАУ, основанный на использовании адсорбционного метода отбора проб с использованием оксида алюминия, как метод контроля концентрации ПАУ, находящихся в газовой фазе в промышленных выбросах, поступающих в атмосферу через аэрационные фонари и дымовые трубы корпусов электролиза.

2 Разработанное пробоотборное устройство для проведения аналитического контроля промышленных выбросов с целью проведения экологического мониторинга ПАУ, находящихся как в твердой, так и в газовой фазе в промышленных выбросах производства алюминия.

Достоверность результатов диссертационной работы базируется на большом объеме экспериментальных данных, статистической обработке полученных экспериментальных данных, использовании современного химико-аналитического оборудования.

Апробация работы. Основные результаты диссертационной работы доложены на международной конференции «Промышленная безопасность предприятий минерально-сырьевого комплекса в XXI веке», (г. Санкт-Петербург, 2016), VI международной научно-практической конференции «Инновации и перспективы развития горного машиностроения и электромеханики – IPDME – 2018» (г. Санкт-Петербург, 2018г.), VII Всероссийском конгрессе молодых ученых (г. Санкт-Петербург, 2018г.), международной конференции «Промышленная безопасность предприятий минерально-сырьевого комплекса в XXI веке», (г. Санкт-Петербург, 2018г.), VI

международной научно-практической конференции «Инновации и перспективы развития горного машиностроения и электромеханики – IPDME – 2019» (г. Санкт-Петербург, 2019 г.), VIII Всероссийском конгрессе молодых ученых (г. Санкт-Петербург, 2019 г.)

Личный вклад автора в работу заключается в постановке целей и задач теоретических и экспериментальных исследований, формулировке научных положений, непосредственном участии в проведении экспериментов, интерпретации полученных результатов и создании на их основе прототипного устройства.

Реализация (внедрение) результатов работы. Результаты диссертационной работы применяются при контроле ПАУ в промышленных выбросах алюминиевых заводов департаментом экологии ООО «РУСАЛ ИТЦ».

Публикации по работе. Результаты диссертационной работы в достаточной степени освещены в 9 печатных работах, в том числе в 2 статьях - в изданиях из перечня рецензируемых научных изданий, в которых должны быть опубликованы основные научные результаты диссертаций на соискание ученой степени кандидата наук, в 4 статьях - в изданиях, входящих в международные базы данных и системы цитирования Scopus.

Структура работы. Диссертация состоит из оглавления, введения, 4 глав с выводами по каждой из них, заключения, списка литературы, включающего 153 наименований, списка иллюстративного материала и 4 приложений. Диссертация изложена на 150 страницах машинописного текста, содержит 46 рисунков и 18 таблиц.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы работы, сформулированы цель, задачи работы и научная новизна, раскрыты теоретическая и практическая значимости исследования и изложены основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе «Анализ современного состояния методов контроля ПАУ» рассмотрены существующие методы и средства контроля ПАУ в промышленных выбросах. Показано, что соединения ПАУ разделяются между газовой и твердой фазами (под твердой фазой понимают сконденсировавшиеся пары ПАУ на

взвешенных частицах), что влияет на выбор метода пробоотбора ПАУ. Показано, что применение только метода фильтрации взвешенных частиц через различные фильтры занижает в промышленных выбросах концентрации соединений с низкой молекулярной массой, такие как нафталин и антрацен. Обоснован выбор адсорбционного метода контроля, основанного на концентрировании вещества на поверхности или в объеме микропор твердого тела. Показано, что наиболее распространенными сорбентами в лабораторной практике являются синтетические сорбенты: стирол/дивинбензоловая смола (XAD-2) и пенополиуретан (ППУ). Показано, что данные сорбенты требуют предварительной многочасовой процедуры очистки перед применением и многочасовой экстракции аналитов после отбора проб воздуха (до 24 часов). Данные процедуры требуют большого расхода растворителей.

Показано, что оксид алюминия является эффективным сорбентом по отношению к смолистым веществам, в состав которых входят ПАУ, в сухих газоочистных установках (ГОУ), используемых при производстве алюминия. Показана эффективность улавливания легколетучих соединений кипящим слоем оксида алюминия при контроле отходящих газов, при этом данное соединение не требует длительной подготовки перед использованием.

Во второй главе «Экспериментальное исследование параметров адсорбционного метода контроля» приведена информация о методах проведения качественного и количественного анализа ПАУ в пробах. Предложена схема лабораторной установки для изучения адсорбции ПАУ оксидом алюминия для разных режимов пробоотбора с последующим определением высоты защитного слоя согласно уравнению Н.А. Шилова (1), которое описывает зависимость времени защитного действия слоя от высоты слоя:

$$\tau_{\text{пр}} = KН - \tau_0 = \frac{1}{U} H - \tau_0, \quad (1)$$

где K – коэффициент защитного действия слоя, с/м;

τ_0 – потеря времени защитного действия слоя, с;

U – скорость движения зоны массопередачи, м/с.

Под термином “время защитного действия“ понимается время, в течение которого единица длины слоя обеспечивает удаление компонента из газа до заданной величины проскока (под термином «проскок» понимается появление соответствующего адсорбата за слоем адсорбента в процессе динамической сорбции).

Предложена схема отбора проб для изучения фазового разделения ПАУ в промышленных выбросах для возможного прогнозирования количественного состава газовой смеси с применением модели разделения Х. Ямасаки - Д. Панкоу. Согласно данной модели коэффициент распределения, K_p , $\text{м}^3/\text{мкг}$, рассчитывается по формуле (2):

$$K_p = \frac{c_t}{c_n \cdot c_g}, \quad (2)$$

где c_t – концентрация адсорбированного на твердых частицах, $\text{нг}/\text{м}^3$;

c_g – концентрация адсорбата в газовой фазе, $\text{нг}/\text{м}^3$;

c_n – общая концентрация твердых частиц, $\text{мкг}/\text{м}^3$.

Связь коэффициента разделения с температурой описывается следующей формулой (3):

$$\log K_p = \frac{m_p}{T} + b_p, \quad (3)$$

где m_p и b_p – коэффициенты;

T – температура, К.

Показаны методы исследования удельной поверхности адсорбента, его пористости и дисперсного состава.

Показано, что основными источниками неопределенностей при контроле ПАУ в промышленных выбросах являются следующие процедуры:

- 1 Измерение объемного расхода при отборе проб, приведенного к нормальным условиям;
- 2 Соблюдение условий изокINETического отбора проб;
- 3 Измерение коэффициента, учитывающего степень улавливания ПАУ;
- 4 Измерение массы ПАУ в отобранной пробе;
- 5 Измерение коэффициента, учитывающего извлечение ПАУ.

Суммарная стандартная неопределенность измерений концентраций ПАУ в промышленных выбросах рассчитывается по формуле (4):

$$u_c^0 = \sqrt{(u_{(m\text{ПАУ}-m\text{ПАУ}0)}^0)^2 + (u_{V0}^0)^2 + (u_{f1}^0)^2 + (u_{f2}^0)^2 + (u_{f3}^0)^2 + (\sigma_c^0)^2}, \quad (4)$$

где $u_{(m\text{ПАУ}-m\text{ПАУ}0)}^0$ - относительная стандартная неопределенность массы ПАУ в отобранной пробе (оценка по типу А+В), %;

u_{V0}^0 - относительная стандартная неопределенность отобранного объема газа, приведенного к нормальным условиям (оценка по типу В), %;

u_{f1}^0 - относительная стандартная неопределенность коэффициента, учитывающего соблюдения условия изокINETичности при отборе пробы (оценка по типу В), %;

u_{f2}^0 - относительная стандартная неопределенность коэффициента, учитывающего степень извлечения ПАУ при пробоподготовке (оценка по типу А), %;

u_{f3}^0 - относительная стандартная неопределенность коэффициента, учитывающего степень улавливания ПАУ при отборе проб (оценка по типу А), %;

σ_c^0 - относительное стандартное отклонение результатов измерений (оценка по типу А), %

Значение расширенной неопределенности вычисляют по формуле (5):

$$U = k \cdot u_c^0, \quad (5)$$

где k – коэффициент охвата, численный коэффициент.

u_c – суммарная относительная стандартная неопределенность.

Выбор коэффициента охвата зависит от требуемого уровня доверия. Для уровня доверия $P=95$ % коэффициент охвата принимают равным 2.

В третьей главе «Экспериментально-теоретическое обоснование применения адсорбционного метода контроля ПАУ в промышленных выбросах» показано, что адсорбция ПАУ зависит содержания в нем активной окиси алюминия ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$). При адсорбции ПАУ оксидом алюминия возможны хемосорбционные

процессы. Молекулы ПАУ способны к образованию π -комплекса (комплекс с переносом заряда), аналогичного водородной связи, при этом ПАУ выступают акцептором иона водорода. В связи с чем, увеличение концентрации гидроксильных групп на поверхности оксида алюминия увеличивает адсорбцию ПАУ.

Эксперименты по изучению адсорбционной способности оксида алюминия в зависимости от содержания в нем воды, показали увеличения степени улавливания легколетучих ПАУ, содержащих два ароматических кольца при увеличении содержания воды в соответствии с рисунком 1.

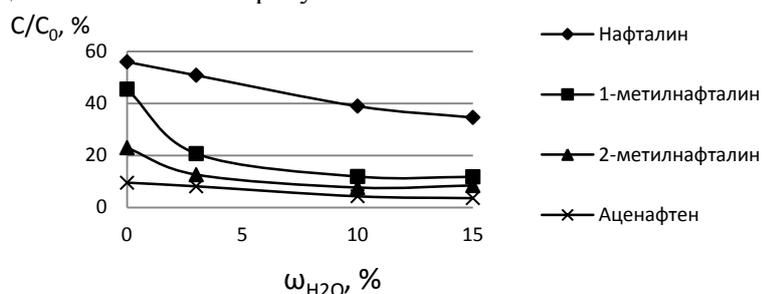


Рисунок 1 – Проскок ПАУ в зависимости от содержания воды

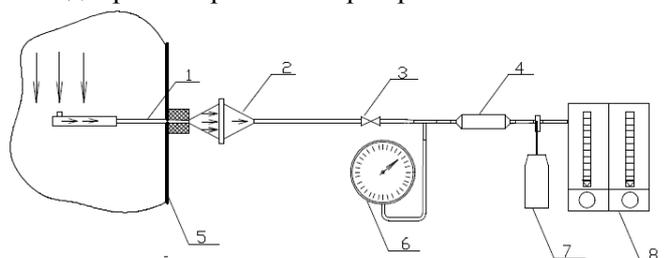
При этом соединения, занимающие промежуточное положение и содержащие от 3 до 4 колец (с молекулярной массой от 166 до 202 г/моль) имеют неярко выраженную тенденцию к изменению сорбции при увеличении массовой доли воды. При этом в случае с ПАУ, имеющими большую молекулярную массу, чьи пространственные размеры молекул больше, увеличение содержания воды ведет к незначительному снижению сорбции, вследствие перекрытия поверхности адсорбента молекулами воды.

Эксперименты, проведенные с целью изучения степени улавливания ПАУ оксидом алюминия, ХАД-2 и ППУ, показали, что ППУ обладает наименьшей сорбционной емкостью по отношению к ПАУ. Сорбционная емкость оксида алюминия и ХАД-2 отличаются незначительно для всех соединений за исключением нафталина. При этом количество растворителя, используемого при работе с ХАД-2

увеличивается в пять раз с учетом необходимости его очистки перед применением.

Показано, что при использовании оксида алюминия в качестве сорбента наилучшим решением является применение сорбционной кассеты с высотой сорбента до 5 мм и диаметром от 30 мм. Предложена конструкция пробоотборного устройства в виде двух усеченных конусов с углом расширения 40°.

Предложена схема отбора проб в источниках загрязнения атмосферы в соответствии с рисунком 2. При которой отбор проб ведется при условии изокINETИЧНОСТИ – равенства скоростей потоков в трубе и на входе в фильтровальный патрон, не соблюдение которого может являться источником значительных ошибок при измерении концентрации ПАУ, адсорбированных на твердых частицах. Соблюдение данного условия обеспечивается определенным диаметром входного сечения фильтровального патрона и подбором скорости отбора проб.

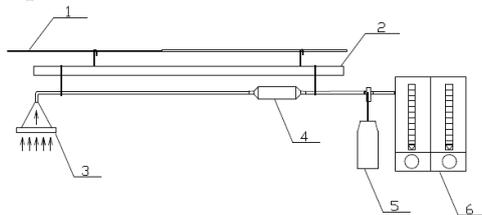


1 – пробоотборная трубка с фильтровальным патроном, 2 – пробоотборное устройство, 3 – кран, 4 – осушитель газа, 5 – газоход, 6 – вакуумметр, 7 – термометр, 8 – аспиратор.

Рисунок 2 – Схема отбора проб

Проведение замеров концентрации ПАУ в отходящих газах предполагает 20 минутный отбор проб с одновременным контролем таких параметров как температура, давление и влажность отходящих газов с целью приведения измеряемых концентраций к нормальным условиям: $T_0 = 273 \text{ K}$, $P_0 = 760 \text{ мм рт.ст.}$, сухой газ. Для отбора проб в аэрационных фонарях применяется схема, приведенная на рисунке 3. В данном случае скорость отбора проб может лимитироваться концентрацией загрязняющих веществ,

методом пробоподготовки и чувствительностью детектора, выбранного для проведения анализа.



1 - струна, 2 – штанга, 3 – пробоотборное устройство, 4 – осушитель газа, 5 – термометр, 6 – аспиратор.

Рисунок 3 – Схема отбора проб в аэрационных фонарях

В четвертой главе «Экспериментальная проверка адсорбционного метода контроля» представлены результаты исследований содержания ПАУ в промышленных выбросах производства алюминия. Согласно рисунку 4 в выбросах из аэрационных фонарей ПАУ практически равнозначно разделяются между газовой и твердой составляющей газовой смеси.

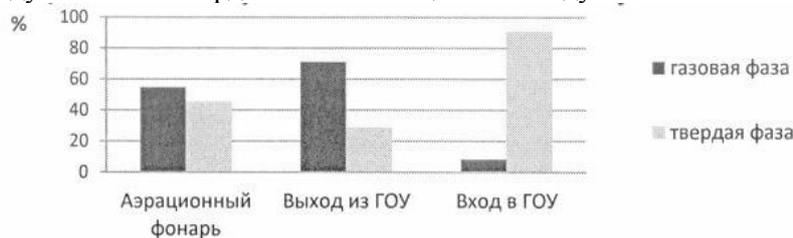


Рисунок 4 - Распределение ПАУ между твердой и газовой фракциями в зависимости от источника загрязнения атмосферы

В выбросах после ГОУ свыше 70% массовой доли ПАУ находятся в газообразном состоянии, в тоже время в газовой смеси, поступающей на ГОУ, ПАУ в основном присутствуют в твердой фазе.

Показана возможность математического описания разделения ПАУ между фазами в зависимости от температуры газопылевого потока. Согласно рисунку 5 зависимость коэффициента разделения от температуры имеет линейный характер для групп ПАУ с одинаковым количеством колец, входящих в состав ПАУ.

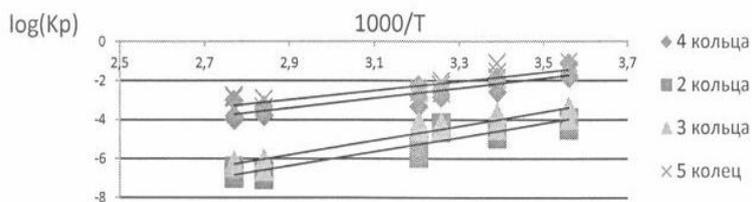


Рисунок 5 - Зависимость $\log(K_p)$ от T

На основании полученных экспериментальных данных показано, что с увеличением скорости потока происходит увеличение количества неадсорбированных ПАУ. Наибольший проскок характерен для соединений, состоящих из 2-х – 3-х колец, поэтому изучение зависимости высоты защитного слоя от скорости потока представляет наибольший интерес для данных соединений.

Были получены зависимости времени защитного действия от высоты слоя адсорбента при заданных значениях проскока: нафталин, 1-метилнафталин, 2-метилнафталин – 20 %; аценафтен – 10%, флуорен – 5%, фенантрен – 3% согласно рисунку 6, что позволило установить зависимость высоты слоя сорбента при заданном проскоке от скорости потока.

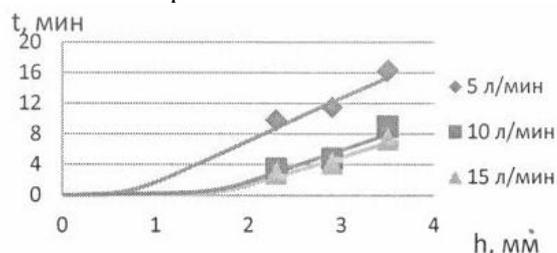


Рисунок 6 - Зависимость времени защитного действия от высоты слоя адсорбента на примере 1-метилнафталина

Значения высот слоя позволяют рассчитать динамическую активность оксида алюминия. В таблице 1 приведены рассчитанные значения высоты защитного слоя, h , мм и значения динамической активности оксида алюминия по отношению к ПАУ при скорости потока 0,125 м/с.

Таблица 1 – Высота защитного слоя оксида алюминия и его динамическая активность

ПАУ	Высота защитного слоя, h, мм	Динамическая активность, мкг/г
нафталин	2,6	14,0
1-метилнафталин	2,4	7,5
2-метилнафталин	2,0	9,1
аценафтен	1,5	28,4
флуорен	1,2	14,1
фенантрен	0,71	78,5

Минимальная необходимая масса адсорбента, m_a , г, рассчитывалась по уравнения материального баланса (8):

$$m_a = \frac{Q \cdot (C_0 - C_k) \cdot \tau}{a_d}, \quad (8)$$

где Q – объемный расход, улавливаемой пробы, m^3/c ;

C_0 – концентрация ПАУ в газовой смеси, $мкг/м^3$;

C_k – концентрация ПАУ в газовой смеси, прошедшей через пробоотборное устройство, $мкг/м^3$;

τ – продолжительность отбора пробы, с;

a_d – динамическая емкость адсорбента в рабочих условиях, $мкг/г$.

Высота слоя сорбента h_c , мм, рассчитывалась по формуле (9):

$$h_a = \frac{10 \cdot 4 \cdot m_a}{\pi \cdot d_c^2 \cdot \rho_{нас}} \quad (9)$$

где m_a – массу адсорбента, г;

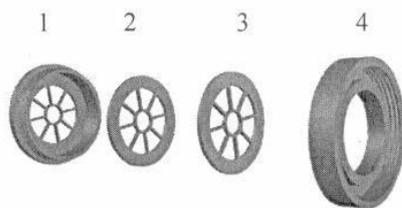
d_c – рабочий диаметр кассеты, см;

$\rho_{нас}$ – насыпная плотность адсорбента, $г/см^3$.

$d_c = 50$ мм.

В результате расчетов были получены значения значения массы оксида алюминия, необходимой для контроля ПАУ с заданными проскоками, составившей 5,1 г, и высоту соответствующего слоя ($h = 3$ мм).

На основании полученных данных была разработана кассета для пробоотбора в соответствии с рисунком 7.



1 - нижняя часть корпуса; 2 и 3 – внутреннее кольцо; 4 – верхняя часть корпуса.

Рисунок 7 – Элементы конструкции кассеты

Конструкция данной кассеты предполагает наличие сборно-разборного корпуса, двух внутренних колец 2 и 3. В нижнюю часть корпуса кассеты вкладывается фильтр. Далее вкладывается кольцо 2, в пространство которого засыпается адсорбент. Кольцо 2 имеет толщину 3 мм и лимитирует слой адсорбента. Далее вкладывается второй фильтр, прижимное кольцо 3 и накручивается верхняя часть корпуса. Данная сорбционная кассета помещается в разработанный пробоотборный аллонж, имеющий конусообразную форму.

Проведено математическое моделирование движения газопылевого потока в предложенном пробоотборном устройстве. Результаты расчетов показали, что исследуемая модель обладает равномерным градиентом уменьшения скорости при движении газопылевой смеси от входа в пробоотборное устройство до адсорбционной кассеты, с незначительным увеличением скорости при входе в диффузор. Характер движения взвешенных частиц в потоке также имеет равномерный характер согласно рисунку 8.

Проведен анализ источников неопределенностей измерения концентрации ПАУ в промышленных выбросах. Показано, что значения расширенной неопределенности для отдельных ПАУ составили менее 20 %. Значения расширенной неопределенности более 20 % для таких соединений как дибенз(a,h) антрацен и бенз(g,h,i)перилена обусловлено их низким содержанием в промышленных выбросах и, как следствие, высоким значением СКО. Вклад коэффициентов, учитывающих степень улавливания ПАУ согласно рисунку 9, составил от 3 до 37 %, вклад коэффициентов, учитывающих степень извлечения ПАУ, составил

не более 3 %, что значительно меньше по сравнению с другими источниками неопределенностей.

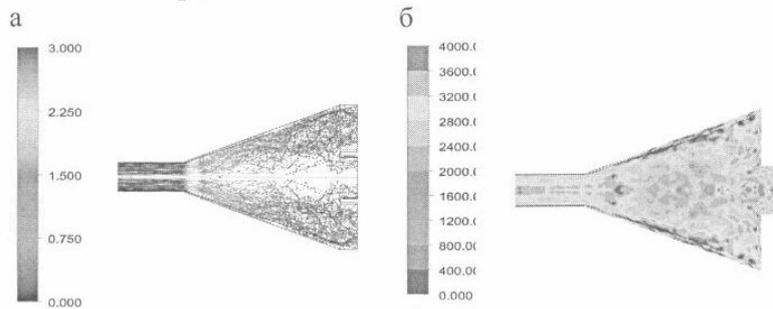


Рисунок 8 – Моделирование движение взвешенных частиц в пробоотборном устройстве: а - скорость частиц, м/с; б – концентрация частиц, мг/м³

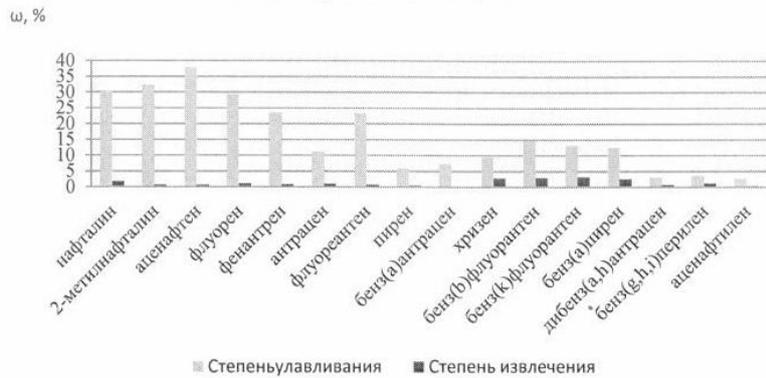


Рисунок 9 - Доля неопределенности коэффициента, учитывающего степень извлечения ПАУ, и неопределенности коэффициента, учитывающего степень улавливания ПАУ в суммарной стандартной неопределенности

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Диссертация представляет собой законченную научно - квалификационную работу, в которой предлагается новое решение актуальной научной задачи – контроль полиароматических углеводородов в промышленных выбросах.

Выполненные исследования позволяют сделать следующие выводы:

1. Проведенный анализ существующих методов контроля ПАУ позволил установить основные факторы, влияющие на продолжительность проведения аналитического контроля концентрации ПАУ в промышленных выбросах.

2. На основании проведенных экспериментов получены данные о фазовом составе ПАУ в газовой смеси, выделяющейся на различных источниках загрязнения атмосферы производства алюминия.

3. Установлено, что для описания разделения ПАУ между твердой и газовой фазами в промышленных выбросах с температуры и общей запыленности газовой смеси можно применять уравнение Ямасаки –Панкоу.

4. Выявлены закономерности удержания ПАУ оксидом алюминия в динамических условиях в зависимости от содержания в нем воды. Показано влияние скорости потока загрязняющих веществ, проходящих через адсорбент на удержание ПАУ.

5. Разработано пробоотборное устройство для проведения аналитического контроля промышленных выбросов ПАУ, конструкция которого обоснована математическим моделированием с учетом особенностей геометрических параметров устройства.

6. Проведен анализ источников неопределенностей, входящих в суммарную неопределенность, характерную для методик измерения концентрации ПАУ в промышленных выбросах. Показано, что вклад неопределенностей, связанных с применением разработанного пробоотборного устройства в суммарную неопределенность значительно меньше по сравнению с другими источниками неопределенностей.

7. Получено заключение о внедрении результатов диссертации в деятельности ООО «РУСАЛ ИТЦ».

8. Перспективными разработками данной темы является исследование возможности применения разработанного устройства при контроле полиароматических углеводородов в промышленных выбросах и разработка методик непрерывного суточного контроля полиароматических углеводородов в промышленных выбросах с применением предложенного пробоотборного устройства.

СПИСОК ОСНОВНЫХ РАБОТ, ОПУБЛИКОВАННЫХ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Публикации в изданиях из Перечня ВАК:

1 Таранина, О.А. Методы контроля выбросов смолистых веществ (возгонов каменноугольного пека) в атмосферу в рамках производственного экологического контроля на алюминиевых заводах Российской Федерации / О.А. Таранина, В.С.Буркат // Экологические системы и приборы. - 2017. - № 6. - С. 3-7.

2 Таранина, О.А. О возможных ошибках при определении величины мощности выбросов загрязняющих веществ / М.В. Волкодаева, О.А. Таранина, Я.С.Канчан // Системы контроля окружающей среды. - 2018. - вып. 12/32. - С. 122-127.

Публикации в изданиях, входящих в международные базы данных и системы цитирования Scopus:

3 Taranina, O.A. Measuring of industrial emission parameters / M. V. Volkodaeva, O. A. Taranina, V. A. Kuznecov. - DOI:10.1088/1755-1315/194/6/062035. - Текст: электронный // «IPDME – 2018»: IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science. Saint-Petersburg. - 2018. - Vol. 194. - URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1755-1315/194/6/062035> (дата обращения: 13.01.2020).

4 Taranina, O.A. Development of industrial environmental control methods / M. V. Volkodaeva, O. A. Taranina, Ya. A. Volodina, V. A. Kuznecov. - DOI:10.1088/1755-1315/378/1/012108. - Текст: электронный // «IPDME – 2018»: IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science. Saint-Petersburg. – 2019. - Vol. 378. - URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1755-1315/378/1/012108/pdf> (дата обращения: 13.01.2020).

5 Taranina, O.A. Functional zoning of urban areas with regard to environmental quality is one of ways to create more favourable conditions for life / M. V. Volkodaeva, O. A. Taranina, Ya. A. Volodina. - DOI:10.1088/1757-899X/687/6/066041. - Текст: электронный //

«ICCATS-2019»: IOP Conference Series: Materials Science and Engineering (MSE). Chelyabinsk. – 2019. - Vol. 687. - URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1757-899X/687/6/066041/pdf> (дата обращения: 13.01.2020).

6 Таранина, О.А. Анализ содержания полиароматических углеводородов в газовой и твердой фазах в промышленных выбросах производства алюминия = Analysis of the Concentration of Gas-Phase and Solid-Phase Polyaromatic Hydrocarbons in Industrial Emissions from Aluminum Production / О.А. Таранина, В.С. Буркат, М.В. Волкодаева // *Металлург = Metallurgist*. - 2019. - № 11. - С. 77-83.

Публикации в прочих изданиях:

7 Таранина, О.А. Методы определения полиароматических углеводородов в выбросах производства алюминия / О.А. Таранина, Н.В. Зорько, М.В. Волкодаева // *Горный информационно-аналитический бюллетень*. - 2017. - № 4. - С. 196-204.

8 Таранина, О.А. Контроль канцерогенных полиароматических углеводородов в промышленных выбросах / О.А. Таранина, В.С. Буркат, М.В. Волкодаева // *Сборник трудов XII Всероссийской научно-практической конференции с международным участием «Здоровье – основа человеческого потенциала: проблемы и пути их решения», 23-25 ноября 2017.* – Санкт-Петербург, 2017. - Т. 12, Ч. 2. - С. 755-758.

9 Таранина, О.А. Инструментальная диагностика полиароматических углеводородов в промышленных выбросах / М.В. Волкодаева, О.А. Таранина // *Горный информационно-аналитический бюллетень*. - 2019. - Т. 2. - С. 415-421.