

Оценка максимальной активности нерегистрируемых радионуклидов, при которой годовая эффективная доза, создаваемая ими, составит 1% от дозы всех радионуклидов в газоаэрозольных выбросах при нормальной эксплуатации АЭС

В статье решается задача оценки максимальной активности нерегистрируемых радионуклидов, при которой доза, создаваемая ими, составляет 1% от дозы всех радионуклидов в газоаэрозольных выбросах. Приведено расчетно-теоретическое обоснование нижнего предела измерения (НПИ) различных групп радиоактивных веществ. Результаты могут быть применены для установления требований к оборудованию для проведения обследования РТО источников выбросов радиоактивных веществ АЭС в атмосферный воздух.

Ключевые слова:

АЭС, дозиметрический контроль, эффективная доза, активность, радиоактивные вещества, радионуклиды, НПИ, атмосферные выбросы, окружающая среда.

**А.-Н.В.Вуколова¹, А.П.Долгих²,
А.А.Русинкевич¹**

¹ Научный Исследовательский Центр
«Курчатовский институт», г. Москва

² АО «Концерн Росэнергоатом», г. Москва

Нормирование и контроль выбросов радиоактивных веществ в атмосферный воздух является необходимой составляющей эксплуатации атомных станций. При нормировании необходимой составляющей является установление перечня нормируемых и контролируемых радионуклидов.

Одним из подходов к установлению и обоснованию перечня нормируемых и контролируемых радионуклидов является радиационно-техническое обследование (РТО) всех источников выбросов РВ в атмосферу.

Радиационно-техническое обследование осуществляется на основании проведения измерительных процедур, которые всегда имеют нижний предел измерения (НПИ) оборудования. Значение НПИ обусловлено метрологическими возможностями аппаратуры, методов, методик и условий измерения [2].

Согласно [1,3] нормироваться и контролироваться должны все «радиоактивные вещества, выбрасываемые из источника выбросов вредных (загрязняющих) веществ в атмосферный воздух, суммарный вклад которых в годовую эффективную дозу облучения лиц из критической группы населения (далее – дозу), создаваемую выбросом этого источника, составляет не менее 99%».

В соответствии с международно признанным подходом [4] и сложившейся в РФ практикой [5] «в случае, если существующими на АС приборами и методами некоторые радионуклиды, нормируемые в выбросах и сбросах, не определяются, фактическому выбросу/сбросу нормируемого радионуклида присваивается значение $1/2$ произведения нижнего предела измерения на суммарный объем выброса/сброса».

Следовательно, предполагается, что радионуклиды считают регистрируемыми, если их активность больше НПИ, и нерегистрируемыми, если их активность меньше НПИ.

РТО позволяет определить перечень регистрируемых радионуклидов и их относительную активность.

Однако наличие нерегистрируемых радионуклидов в выбросе создает проблему определения дозы от всех радионуклидов. Эта проблема связана с тем, что с метрологической точки зрения нерегистрируемым радионуклидам присваивается активность, равная НПИ/2 [4,5], и если НПИ достаточно велик, то вклад нерегистрируемых радионуклидов в суммарную дозу может быть значительным.

Отсюда возникает задача оценить максимальную активность нерегистрируемых радионуклидов, при которой доза, создаваемая ими, составит 1% от дозы всех радионуклидов в газоаэрозольных выбросах.

Постановка задачи

В рамках рассмотрения указанной проблемы в предлагаемой статье решалась задача со следующими условиями:

1. Задан перечень радионуклидов и их относительная активность в единичном выбросе (далее – нуклидный вектор или НВ). Суммарная объемная активность всех радионуклидов единичного выброса равна 1 Бк/м^3 .

2. Задан список радионуклидов, которые считаются регистрируемыми. Все регистрируемые нуклиды имеют объемную активность больше, чем нерегистрируемые.

Требуется найти такое максимальное значение объемной активности нерегистрируемых нуклидов q_0 , при котором, если это значение приписать всем нерегистрируемым радионуклидам, то суммарная эффективная доза, создаваемая ими, составит 1% от суммарной эффективной дозы всех регистрируемых и нерегистрируемых радионуклидов, что в соответствии с [1] освобождает данные радиоактивные вещества от государственного учета и нормирования.

Решение задачи

Для решения данной задачи предположим, что в газоаэрозольный выброс АЭС входит N радионуклидов. Измеряются (регистрируются) $N_R \leq N$ радионуклидов, имеющих активность q_i выше заданного уровня q_0 . Предположим, что нуклиды нумеруются следующим образом: $q_1 \geq q_2 \geq q_3 \geq \dots \geq q_N$. Тогда q_{N_R} – минимальная активность зарегистрированного радионуклида ($q_{N_R} \geq q_0$).

Считается, что все нерегистрируемые нуклиды имеют активность меньше или равную q_0 , т. е. значение активности нерегистрируемых радионуклидов лежит в интервале от нуля до q_0 .

Консервативно каждому из нерегистрируемых радионуклидов приписывается значение активности, равное q_0 . В АО «Концерн Росэ-

нергоатом» принято [5,6], что нерегистрируемые нуклиды должны учитываться, и им должна приписываться активность, равная половине НПИ. Таким образом, $q_0 = \text{НПИ} / 2$.

В этом случае можем найти H_Σ – годовую эффективную дозу, создаваемую всеми радионуклидами, входящими в газоаэрозольный выброс АЭС:

$$H_\Sigma = \sum_{i=1}^N C_i \cdot q_i = \sum_{i=1}^{N_R} C_i \cdot q_i + \sum_{i=N_R+1}^N C_i \cdot q_i = H_{N_R} + H_{(N-N_R)}$$

где C_i – коэффициент перехода i -го радионуклида от активности q_i к создаваемой им эффективной дозе H_i , Зв/Бк;

$H_{N_R} = \sum_{i=1}^{N_R} C_i \cdot q_i$ – сумма эффективных доз, которые создают H_R регистрируемых нуклидов;

$H_{(N-N_R)} = \sum_{i=N_R+1}^N C_i \cdot q_i$ – сумма эффективных доз, которые создают все нерегистрируемые радионуклиды.

При условии, что $i \in [N_R+1, N]$ получим:

$$H_{(N-N_R)} \leq q_0 \cdot \sum_{i=N_R+1}^N C_i$$

Исходя из допущения, что суммарная доза регистрируемых радионуклидов составляет 99% от суммарной дозы всех нуклидов $H_{N_R} = 0,99 \cdot H_\Sigma$, искомое значение q_0 можно найти по следующей формуле:

$$q_0 = \frac{H_{(N-N_R)}}{\sum_{i=N_R+1}^N C_i} = \frac{H_\Sigma - H_{N_R}}{\sum_{i=N_R+1}^N C_i} = \frac{0,01 \cdot H_\Sigma}{\sum_{i=N_R+1}^N C_i} \quad (1)$$

Учитывая, что $H_\Sigma = \frac{H_{N_R}}{0,99}$, получим:

$$q_0 = \frac{(0,01 / 0,99) \cdot H_{N_R}}{\sum_{i=N_R+1}^N C_i} \quad (2)$$

Теоретически задачу можно считать решенной, но на практике в реальном выбросе АЭС присутствуют радионуклиды, активности которых различаются на несколько порядков. Соответствующим образом различаются и q_0 .

Практическое значение НПИ

Существует зависимость q_0 от характеристик измеряемого радионуклида, методов и оборудования, используемых при измерениях.

Можно выделить три блока измерений с разными q_0 : отбор проб и измерение активности инертных радиоактивных газов (ИРГ), радиоактивных аэрозолей (далее – аэрозоли) и ^3H и ^{14}C .

Радионуклиды ^3H и ^{14}C выделены в отдельную группу, потому что для них, согласно [3,6], введена отдельная, отличная от других радионуклидов, процедура расчета дозы.

Нерегистрируемые радионуклиды по методам измерения активности могут относиться либо к ИРГ, либо к аэрозолям. Это связано с различием на 3 порядка активности ИРГ и аэрозолей в выбросах АЭС.

Единого q_0 для всех методов измерения активности нуклидов не существует.

Будем считать, что существует только два метода измерений активности: активность аэрозолей и активность ИРГ, каждый из которых имеет свою q_0 .

Чтобы определить значение q_A для аэрозолей, введем виртуальный нуклид, активность которого равна $q_{\text{ирг}}$, а коэффициент перехода от активности к дозе $C_{\text{ирг}}$ равен сумме коэффициентов нерегистрируемых радионуклидов инертных радиоактивных газов.

В этом случае:

$$q_A = \frac{(0,01 / 0,99) \cdot H_{N_R} - C_{\text{ирг}} \cdot q_{\text{ирг}}}{\sum_{i=N_R+1}^N C_i - C_{\text{ирг}}} \quad (3)$$

где q_A – максимальное значение объемной активности нерегистрируемых радионуклидов, относящихся к аэрозолям;

$q_{\text{ирг}}$ – максимальное значение объемной активности нерегистрируемых радионуклидов, относящихся к ИРГ;

H_{N_R} – объемная доза регистрируемых нуклидов, Зв/м³;

N_R – число регистрируемых нуклидов, безразмерная величина;

N – число нуклидов в Перечне нуклидов, безразмерная величина;

$\sum_{i=N_R+1}^N C_i$ – сумма коэффициентов всех нерегистрируемых радионуклидов, Зв/Бк;

$C_{ирг}$ – коэффициент виртуального нуклида (сумма коэффициентов нерегистрируемых радионуклидов инертных радиоактивных газов), Зв/Бк.

Таким образом, зная нуклидный вектор и используя выражения (2) и (3), можно планировать проведение измерений с соблюдением заданного вклада (99%) в суммарную дозу регистрируемых нуклидов.

Пример использования предложенного подхода

В качестве примера использования предложенного подхода ниже приведены значения q_A и $q_{ирг}$ для прецизионных измерений, проведенных в рамках радиационно-технического обследования источников выбросов РВ на Курской АЭС [7]. Проведенные измерения послужили основой для определения перечня радионуклидов, подлежащих нормированию на АЭС АО «Концерн Росэнергоатом».

Прецизионные измерения проводились в условиях большого расхода воздуха, значительно (на два порядка) превосходившем расход воздуха при стандартном контроле выбросов. Это позволило существенным образом снизить НПИ оборудования. Для сравнения в табл.1 представлены НПИ штатных систем Курской АЭС для некоторых радионуклидов [8], значения НПИ прецизионных измерений и рекомендуемые значения НПИ для контроля выбросов при эксплуатации легководных реакторов [9]. В прецизионных измерениях минимальное значение НПИ гамма-излучающих радионуклидов составило $1,0 \cdot 10^{-4}$ Бк/м³ при измерении активности ⁹⁴Nb, минимальное

значение НПИ бета-излучающих радионуклидов составило $1,54 \cdot 10^{-5}$ Бк/м³ при измерении активности ⁹⁰Sr.

С более подробной информацией об использованных в ходе РТО методиках измерения активности радионуклидов, входящих в выброс Курской АЭС, возможно ознакомиться в отчете [10].

Будем считать, что зарегистрированные нуклиды имеют активность выше $1,0 \cdot 10^{-4}$ Бк/м³. Тогда, согласно [4-6], активность, приписываемая незарегистрированным нуклидам, равна $5,0 \cdot 10^{-5}$ Бк/м³, т. к. большая часть незарегистрированных радионуклидов является гамма-излучателями, как ⁹⁴Nb.

Список регистрируемых радионуклидов

В качестве списка и активностей регистрируемых радионуклидов взяты результаты измерения проб ИРГ, аэрозолей, трития и углерода в выбросах Курской АЭС (табл.1) [7].

В качестве списка нерегистрируемых радионуклидов возьмем радионуклиды, представленные в [11] для атмосферного воздуха (далее – Перечень Правительства), которые формально необходимо нормировать и контролировать в выбросах АЭС, и которые не были зарегистрированы в выбросах Курской АЭС по результатам радиационно-технического обследования.

Нижний предел измерения активности радионуклидов ИРГ в выбросах Курской АЭС составлял 1 Бк/м³. Это означает, что активность нерегистрируемых радионуклидов ИРГ не превышает 0,5 Бк/м³.

Расчеты доз облучения проводились в следующих предположениях (модель расчета дозы):

- расчеты ведутся для выбросов при нормальной эксплуатации АЭС;
- нормируемой величиной является индивидуальная эффективная доза представителя критической группы населения, равная

Табл.1. Результаты измерения проб ИРГ, аэрозолей, трития и углерода в выбросах Курской АЭС.

№ пп	Радионуклид	Значения, достигнутые методами, применяемыми при РТО КуАЭС		НПИ штатных систем КуАЭС для некоторых радионуклидов, Бк/м ³	Рекомендуемый НПИ для легководных реакторов (РБ-135-15), Бк/м ³
		Объемная активность, Бк/м ³	НПИ, Бк/м ³		
1.	⁶⁰ Co	4,21·10 ⁻²	9,86·10 ⁻⁴	5,91·10 ⁻²	1·10 ⁻²
2.	⁵⁴ Mn	3,28·10 ⁻²	1,11·10 ⁻³		1·10 ⁻²
3.	⁵¹ Cr	9,94·10 ⁻²	7,85·10 ⁻⁴		
4.	¹³⁷ Cs	4,40·10 ⁻³	5,81·10 ⁻⁴	5,05·10 ⁻²	3·10 ⁻²
5.	⁶⁵ Zn	8,06·10 ⁻⁴	3,47·10 ⁻⁴		1·10 ⁻²
6.	⁵⁹ Fe	2,46·10 ⁻³	2,24·10 ⁻⁴		1·10 ⁻²
7.	⁹⁵ Nb	2,95·10 ⁻³	7,83·10 ⁻⁴		2·10 ⁻²
8..	⁵⁸ Co	1,31·10 ⁻³	1,20·10 ⁻⁴		
9.	⁹⁵ Zr	1,98·10 ⁻³	2,04·10 ⁻⁴		2·10 ⁻²
10.	⁹⁴ Nb	6,91·10 ⁻⁴	1,03·10 ⁻⁴		
11.	¹³¹ I	1,21·10 ⁻³	6,19·10 ⁻⁴	3,7·10 ⁻³	2·10 ⁻²
12.	¹³⁹ Ba	7,90·10 ⁻¹	1,30·10 ⁻¹		
13.	²⁴ Na	1,70·10 ⁻¹	1,00·10 ⁻³		
14.	^{99m} Tc	1,63·10 ⁻²	6,24·10 ⁻⁴		
15.	¹³³ I	1,34·10 ⁻²	1,34·10 ⁻³		2·10 ⁻²
16.	³ H	3,84·10 ²	8,51·10 ⁰	1,8·10 ¹	1·10 ³
17.	¹⁴ C	9,52·10 ¹	7,23·10 ⁰	1,7·10 ¹	1·10 ¹
18.	¹³³ Xe	7,29·10 ³	3,87·10 ⁻¹	5,4·10 ⁻²	1·10 ⁴
19.	^{85m} Kr	3,77·10 ³	1,65·10 ⁻¹	1,8·10 ⁻²	1·10 ⁴
20.	⁸⁸ Kr	5,59·10 ³	2,31·10 ⁻¹	4,5·10 ⁻²	1·10 ⁴
21.	⁸⁷ Kr	3,33·10 ³	8,21·10 ⁻¹	6,8·10 ⁻²	1·10 ⁴
22.	⁴¹ Ar	5,22·10 ³	1,16·10 ⁰	5,5·10 ⁻²	1·10 ⁴
23.	Продукты распада ²²² Rn (²¹⁴ Pb, ²¹⁴ Bi)	2,70·10 ⁰	2,70·10 ⁻²		
24.	¹³⁸ Cs	3,17·10 ⁰	7,64·10 ⁻²		
25.	⁹⁰ Sr	1,72·10 ⁻²	1,54·10 ⁻⁵		2·10 ⁻²

- сумме доз от всех радионуклидов по всем путям облучения (суммарная доза);
- пути облучения:
 - от облака (внешнее облучение);
 - от радиоактивного загрязнения поверхности земли (внешнее облучение);
 - от вдыхания радионуклидов (ингаляционный путь) (внутреннее облучение);
 - от потребления пищевых продуктов, содержащих радионуклиды (пероральный путь) (внутреннее облучение).
 - расчет ведется для АЭС как одного источника выброса радионуклидов;
 - суммарная доза рассчитывается по методике [3] в предположении об отсутствии разбавления выброса в атмосфере.
- Для оценки годовых суммарных эффективных доз, создаваемых радионуклидами, входящими в выбросы АЭС, была применена методика расчетов, аналогичная методике, предложенной МАГАТЭ в [12].

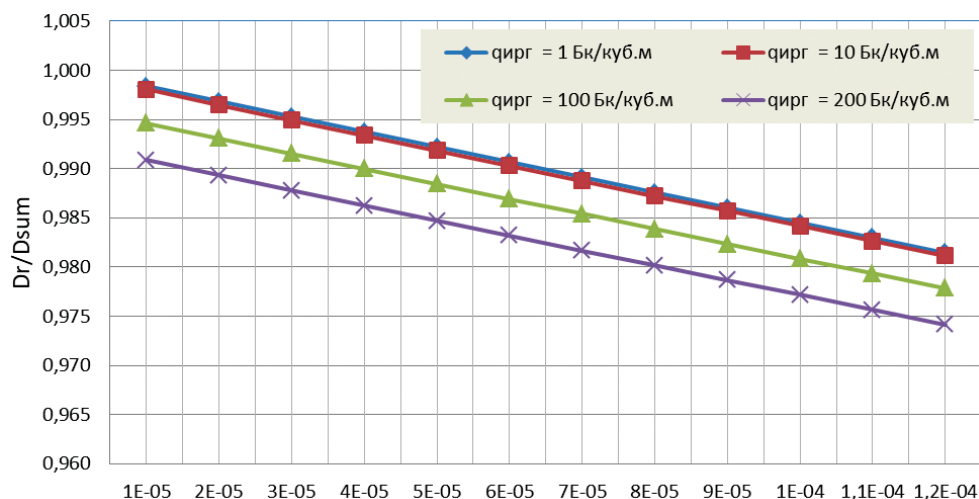


Рис. 1. Зависимость относительного вклада дозы регистрируемых нуклидов (D_r) в суммарную дозу всех нуклидов (D_{sum}) от q_A при различных $q_{ирг}$.

По методике [3] для каждого радионуклида были рассчитаны дозы стандарта q_s , соответствующие суммарной эффективной годовой дозе, создаваемой данным радионуклидом, имеющим активность 1 Бк/м³. Рассчитанные q_s на 99,7% совпали с приведенными в приложении 1 [11] скрининговыми дозами¹ для 92,2% радионуклидов, для которых проводились расчеты. Расхождения между дозами стандарта и скрининговыми дозами для оставшихся 7,8% радионуклидов объясняется расхождением в используемых расчетных коэффициентах.

На рис.1 представлена зависимость относительного вклада дозы регистрируемых нуклидов (D_r) в суммарную дозу всех нуклидов (D_{sum}) от q_A при различных $q_{ирг}$ (1, 10, 100, 200 Бк/м³).

Из представленных результатов следует, что при минимальной детектируемой объемной активности радионуклидов ИРГ ($q_{ирг}$), равной 1–10 Бк/м³, все радионуклиды, относящиеся к аэрозолям и имеющие объемную активность менее 6·10⁻⁵ Бк/м³, не попадают в число радионуклидов, создающих дозу 99% от суммарной дозы всех радионуклидов из Перечня Правительства.

Выше было показано, что для измерений, проведенных на Курской АЭС, активность, приписываемая незарегистрированным нуклидам, равна 5,0·10⁻⁵ Бк/м³.

Учитывая изложенное, по результатам измерения проб ИРГ, аэрозолей, трития и радиоуглерода в выбросах Курской АЭС можно сделать вывод, что предложенный нуклидный вектор (перечень радионуклидов и их относительная активность) обеспечивает 99% вклада этих радионуклидов в суммарную эффективную дозу всех радионуклидов из Перечня Правительства.

Заключение

В данной статье предложен подход к оценке максимального значения активности незарегистрируемых нуклидов, при котором, если это значение приписать всем незарегистрируемым радионуклидам, суммарная эффективная доза, создаваемая ими, составит 1% от суммарной эффективной дозы всех регистрируемых и незарегистрируемых радионуклидов в выбросе радиоактивных веществ в атмосферный воздух.

Показано, что при оценке максимального значения активности незарегистрируемых нуклидов необходимо учитывать состав выбро-

¹ screening doses

сов по абсолютному значению активности и методам регистрации (газ, аэрозоль, альфа- и бета-активные радионуклиды).

Для результатов измерения проб ИРГ, аэрозолей, трития и углерода в выбросах Курской АЭС определены НПИ оборудования. Для измерения ИРГ НПИ должен быть менее 10 Бк/м^3 ; в этом случае для измерения аэрозолей следует использовать оборудование с НПИ менее $1,2 \cdot 10^{-4} \text{ Бк/м}^3$.

В данной статье показано, что нуклидный вектор (перечень радионуклидов и их относительная активность), определенный по

результатам измерения проб ИРГ, аэрозолей, трития и углерода в выбросах Курской АЭС, обеспечивает 99% вклада этих радионуклидов в суммарную эффективную дозу всех радионуклидов из Перечня Правительства, что означает: существующий радиационный контроль на Курской АЭС обеспечивает выполнение требований [1] в полном объеме.

Предложенный в данной статье подход может быть использован для установления требований к оборудованию для проведения обследования источников выбросов радиоактивных веществ в атмосферный воздух.

Литература

1. Приказ Министерства природных ресурсов и экологии Российской Федерации от 31 декабря 2010 г. № 579 «О порядке установления источников выбросов вредных (загрязняющих) веществ в атмосферный воздух, подлежащих государственному учету и нормированию, и о Перечне вредных (загрязняющих) веществ, подлежащих государственному учету и нормированию».
2. МР 2.6.1.27-2003. Зона наблюдения радиационного объекта. Организация и проведение радиационного контроля окружающей среды.
3. РБ-106-15. Рекомендуются методы расчета параметров, необходимых для разработки и установления нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферный воздух.
4. Environmental and Source Monitoring for Purposes of Radiation Protection: safety guide no. RS-G-1.8. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2005.
5. СТО 1.1.1.04.001.0143-2015. Положение о годовых отчетах по оценке состояния безопасной эксплуатации энергоблоков атомных станций.
6. МТ 1.2.1.15.1176-2016. Методика. Разработка и установление нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ атомных станций в атмосферный воздух.
7. Вуколова А.-Н.В., Русинкевич А.А., Долгих А.П. и др. Учет нижнего предела измерения оборудования при контроле газоаэрозольных выбросов радиоактивных веществ на АЭС. Материалы XI Международной научно-технической конференции «Безопасность, эффективность и экономика атомной энергетики». Пленарные и секционные доклады. Москва, 23-24.05.2018, ISBN 978-5-88111-042-0, с. 394-399.
8. Техническое задание на оказание услуг по теме: Разработка отчета «Радиационно-техническое обследование для оценки влияния существующих выбросов Курской АЭС на окружающую среду». URL: zakupki.gov.ru/223/purchase/public/download/download.html?id=30332942 (дата обращения 22.11.2019).
9. РБ-135-17. Руководство по безопасности при использовании атомной энергии. Рекомендации по методам и средствам контроля за выбросами радиоактивных веществ в атмосферный воздух.
10. Отчет о работе по теме «Подготовка исходных данных для обеспечения радиационного контроля выбросов радиоактивных веществ АЭС». Инв. № 336/11-16. Екатеринбург, 2016.

11. Распоряжение Правительства РФ от 8 июля 2015 г. № 1316-р «Об утверждении перечня загрязняющих веществ, в отношении которых применяются меры государственного регулирования в области охраны окружающей среды».
12. International Atomic Energy Agency, INPRO Methodology for Sustainability Assessment of Nuclear Energy Systems: Environmental Impact of Stressors, IAEA Nuclear Energy Series no. NG-T-3.15, IAEA, Vienna, 2016.

Estimation of Maximal Activity of Non-Registered Radionuclides under which the Effective Dose, Created by them, will Be 1% from the Dose by All Radionuclides of Gas-Aerosol Discharge of NPP under Normal Operation

Vukolova Angelina-Nataliya¹, Dolgikh Alexander², Rusinkevich Andrei¹

¹NRC “Kurchatov institute”, Moscow, Russia

²JSC “Concern Rosenergoatom”, Moscow, Russia

Abstract. The article solves the task of estimation of maximal activity of non-registered radionuclides under which the dose, created by them, will be 1% from the dose by all radionuclides of gas-aerosol discharge. The theoretical estimated justification of low measurement limits of radioactive materials in different groups is given. The results may be applied to the establishment of requirements for equipment used for radiation technical survey of NPP sources of radioactive materials discharge into atmospheric air.

Key words: NPP, effective dose, activity, radioactive materials, radionuclides, low measurement limit, airborne discharges, environment.

А.-Н.В.Вуколова¹ (м.н.с.), А.П.Долгих² (к.ф.-м.н., гл. спец.), А.А.Русинкевич¹ (к.т.н., нач.лаб.)

¹ Научный Исследовательский Центр «Курчатовский институт», г. Москва;

² АО «Концерн Росэнергоатом», г. Москва.

Контакты: тел.: +7 (499) 196-73-92; e-mail: Vukolova_av@nrcki.ru.