

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого
Президента России Б. Н. Ельцина»
Физико-технологический институт
Кафедра экспериментальной физики

На правах рукописи

НАЗАРОВ Евгений Игоревич

СОВЕРШЕНСТВОВАНИЕ МЕТОДОВ ОБОСНОВАНИЯ
РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ОТ ВЫБРОСА УГЛЕРОДА-14
ПРИ НОРМАЛЬНОЙ ЭКСПЛУАТАЦИИ ПРЕДПРИЯТИЙ АТОМНОЙ
ОТРАСЛИ

2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл,
радиационная безопасность

Диссертация на соискание ученой степени кандидата
технических наук

Научный руководитель:
д. ф.-м. н., профессор Кружалов Александр Васильевич

Екатеринбург – 2023

Оглавление

ВВЕДЕНИЕ	5
ГЛАВА 1. ОСНОВНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ УГЛЕРОДА-14	13
1.1. Открытие и свойства	13
1.2. Образование	14
Образование в природе	14
Испытания ядерного оружия	15
1.3. Ядерные реакторы как источники ^{14}C	18
1.4. Анализ выбросов ^{14}C атомными электростанциями Европы	27
Распределение АЭС Европы по категориям с наилучшей, устойчивой и наихудшей практикой выброса	30
1.5. Методы отбора ^{14}C	34
1.6. Методы измерения активности радиоуглерода	38
Счетчик Либби	39
Пропорциональные газовые счетчики	40
Жидкостная сцинтилляционная спектрометрия	41
Ускорительная масс-спектрометрия	46
Выводы	49
ГЛАВА 2. РАЗРАБОТКА ПРОБООТБОРНОГО СТЕНДА ^{14}C	50
2.1. Описание стенда	51
2.2. Отбор проб газообразного ^{14}C с помощью разработанного стенда	54
АО «ИРМ»	54
АО «НИФХИ им. Л.Я. Карпова»	56
Выводы	58

ГЛАВА 3. РАЗРАБОТКА МЕТОДА РЕТРОСПЕКТИВНОЙ ОЦЕНКИ ВЫБРОСА ^{14}C	59
3.1. Описание метода	59
3.2. Белоярская АЭС, АО «ИРМ» и Курская АЭС как источники выброса ^{14}C	61
3.3 Расчет метеорологического фактора разбавления	62
3.4 Отбор и подготовка проб	72
3.5 Результаты измерения проб методом ускорительной масс- спектрометрии.....	75
Белоярская АЭС и АО «ИРМ».....	76
Курская АЭС.....	78
3.6 Ретроспективная оценка величины годового выброса ^{14}C	80
Белоярская АЭС и АО «ИРМ».....	81
Курская АЭС.....	83
Выводы	84
ГЛАВА 4. РЕТРОСПЕКТИВНАЯ ОЦЕНКА ГОДОВОЙ ЭФФЕКТИВНОЙ ДОЗЫ В РЕЗУЛЬТАТЕ ВЫБРОСОВ ^{14}C	85
4.1. Описание метода.....	85
4.2. Расчет годовых эффективных доз от выброса ^{14}C Белоярской АЭС и АО «ИРМ».....	88
4.3. Расчет годовых эффективных доз от выброса ^{14}C Курской АЭС.....	90
4.4. Разработка программного обеспечения для ретроспективной оценки годовых эффективных доз от выброса ^{14}C	92
Выводы	94
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	95
ТЕРМИНЫ И ОПРЕДЕЛЕНИЯ	97

СОКРАЩЕНИЯ И ОБОЗНАЧЕНИЯ	99
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ:.....	101
Приложение А. Исходный код программного обеспечения «Ретроспективная оценка годовых эффективных доз от выброса С-14».....	110
Приложение Б. Копия свидетельства о государственной регистрации программы для ЭВМ.....	115

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность темы исследования. В настоящее время на долю атомной энергетики приходится более 10 % от всей выработки электроэнергии в мире [1]. Необходимое условие нормальной эксплуатации атомных электростанций – это приемлемое воздействие или приемлемый риск для человека и окружающей среды. Польза от применения ядерных материалов и радиоактивных веществ всегда сопровождается негативными последствиями в виде ионизирующего излучения и поступления радионуклидов в объекты окружающей среды. Законный практический способ обращения с газообразными радиоактивными отходами, применяемый в атомной промышленности и смежных с ней областях – контролируемый выброс радионуклидов в атмосферу. Важная и необходимая составляющая контроля выбросов – постоянный мониторинг [2].

В течение многих лет как в Советском Союзе, так и в Российской Федерации действовал весьма ограниченный перечень радионуклидов, подлежащих контролю на объектах использования атомной энергии: инертные радиоактивные газы (аргон, криптон, ксенон) и радионуклиды ^{131}I , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{24}Na [3]. Проведение серии радиационно-технических обследований на АЭС России показало, что ^{14}C – низкоэнергетический β -излучатель с периодом полураспада 5730 лет – входит в число пятнадцати радионуклидов, определяющих не менее 99 % дозы облучения критической группы населения от источников выбросов АЭС [4]. Анализ базы данных по выбросам АЭС Европы [5] показал, что одним из основных дозообразующих радионуклидов является ^{14}C , независимо от типа ядерного реактора [6]. Международное агентство по атомной энергетике (МАГАТЭ) рекомендует контролировать не менее 29 радионуклидов, включая ^{14}C , для оценки воздействия на окружающую среду от производства электроэнергии [7]. Причем рекомендуется осуществлять мониторинг не только источника выброса, но и объектов окружающей среды, подверженных воздействию этого

источника, в качестве дополнительных мер по обеспечению радиационной безопасности [2].

Обязательный контроль ^{14}C в выбросах атомных электростанций в России начался после 2015 г. Отсутствие инструментальных измерений выбросов ^{14}C в ранние годы эксплуатации ядерных реакторов и объектов использования атомной энергии (ОИАЭ) не позволяет адекватно оценить выбросы ^{14}C , а также последствия таких выбросов для окружающей среды и человека. Важно также контролировать выброс радиоуглерода в процессе вывода из эксплуатации ядерных реакторов с графитовым замедлителем, поскольку данные типы реакторных установок имеют наибольший удельный показатель выброса (количество образующегося ^{14}C на единицу произведенной электроэнергии).

В процессе работы ядерного реактора радиоуглерод образуется в основном по реакции нейтронной активации атомов примесей, присутствующих в топливе, конструкционных материалах, теплоносителе и замедлителе. Наиболее вероятная реакция – $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ с сечением для тепловых нейтронов 1,82 барн [8]. После образования в ядерном реакторе газообразный ^{14}C поступает в окружающую среду с выбросами из вентиляционной трубы предприятия в форме различных химических соединений (CO_2 , CH_4 , CO и др.) [8]. Для графитоводных реакторов радиоуглерод попадает в атмосферу главным образом в виде $^{14}\text{CO}_2$, тогда как для водо-водяных доля органической фракции ^{14}C в выбросах может достигать 75–95 % [8]. В связи с этим важно контролировать ^{14}C во всех химических формах в выбросах предприятий атомной отрасли для корректной оценки дозовых нагрузок на персонал и население.

После поступления в окружающую среду радиоуглерод встраивается в естественный углеродный цикл и аккумулируется в растениях за счет фотосинтеза. Далее ^{14}C по пищевым цепочкам попадает в организм человека, замещая стабильный аналог – ^{12}C . Опасность накопления радиоуглерода обусловлена двумя факторами: во-первых, внутренним облучением молекул

органических соединений в результате ионизирующего действия β -частиц и ядер отдачи азота, во-вторых, мутагенными нарушениями в клетках живых организмов, обусловленными изменениями химического состава молекул путем превращения атома ^{14}C в атом ^{14}N : $^{14}\text{C} \rightarrow ^{14}\text{N} + e^-$ [9].

Планируемое использование нитридного топлива в технологии замкнутого ядерного топливного цикла, реализуемого госкорпорацией «Росатом» в рамках проекта «Прорыв» может привести к большому количеству образовавшегося ^{14}C [10]. Рост наработки изотопной продукции ^{14}C с целью диагностики наличия бактерий *Helicobacter Pylori* в организме человека также способствует увеличению выброса данного радионуклида в атмосферный воздух.

Таким образом, представленные выше аргументы обуславливают необходимость контроля ^{14}C во всех химических формах в выбросах предприятий атомной отрасли. Наряду с этим актуальной остается задача ретроспективной оценки годового выброса ^{14}C ОИАЭ и годовых эффективных доз на население до ввода обязательного мониторинга. Именно этим проблемам посвящена диссертационная работа.

Степень разработанности темы. Существующие методы контроля в выбросах предприятий атомной отрасли не всегда учитывают органические соединения радиоуглерода. Отсутствие информации о химических соединениях ^{14}C в выбросах может привести к заниженным оценкам годовых эффективных доз на персонал и население. Поскольку обязательный мониторинг радиоуглерода на АЭС России был введен менее 10 лет назад, отсутствуют данные по выбросам ^{14}C с момента ввода в эксплуатацию большинства действующих или уже остановленных ядерных реакторов. Ретроспективные оценки величины годового выброса ^{14}C позволят оценить воздействие данного радионуклида на население на протяжении всего жизненного цикла ядерной реакторной установки.

Цель диссертационной работы – совершенствование системы мониторинга текущих выбросов и ретроспективной оценки поступления ^{14}C в атмосферу при нормальной эксплуатации предприятий атомной отрасли.

В соответствии с поставленной целью в работе **решены** следующие **задачи**:

1. Модифицирован метод и разработан специальный пробоотборный стенд одновременного отбора ^{14}C в различных химических формах в выбросах предприятий атомной отрасли.

2. Разработан метод ретроспективной оценки годового выброса ^{14}C ядерными реакторами различного типа с учетом различных химических форм радиоуглерода.

3. Выполнена ретроспективная оценка годовых эффективных доз на население в результате выброса ^{14}C с учетом корзины питания региона и различных химических форм.

Объект исследования – техногенные газовоздушные выбросы ^{14}C при нормальной эксплуатации ядерных реакторов, включая АЭС и исследовательские реакторные установки.

Предмет исследования – активность ^{14}C в выбросах ядерных реакторов, а также компонентах окружающей среды на территории потенциального воздействия.

Научная новизна работы

В диссертации получены следующие результаты, характеризующиеся научной новизной:

1. Разработан и внедрен в эксплуатацию специальный пробоотборный стенд, позволяющий выполнять одновременный отдельный отбор $^{14}\text{CO}_2$, ^{14}CO , а также органических соединений ^{14}C . Предусмотренная возможность регулировки температурного режима каталитической установки позволяет производить отбор широкого спектра органических соединений ^{14}C .

2. Впервые предложен и реализован метод ретроспективной оценки выброса ^{14}C ядерными реакторами различного типа за любой период

эксплуатации. Метод основан на анализе содержания радиоуглерода в годовых кольцах древесной растительности на территории потенциального воздействия, выполненного методом УМС; учете метеорологических условий, формирующих загрязнение атмосферы; различных химических форм ^{14}C .

3. Впервые выполнена ретроспективная оценка годовой эффективной дозы на население в результате выброса ^{14}C за любой период эксплуатации ядерного реактора. Метод позволяет уточнить величину облучения с учетом реальной корзины питания исследуемого региона, метеорологических условий, формирующих загрязнение атмосферы, химических форм газообразного ^{14}C .

Теоретическая и практическая значимость исследования

Разработанный пробоотборный стенд позволяет выполнять отбор различных химических соединений в выбросах предприятий атомной отрасли, а также на различных технологических цепочках, сопровождаемых выбросом ^{14}C . С помощью разработанного стенда впервые определена доля активности органического ^{14}C в выбросах АО «ИРМ», АО «НИФХИ им. Л. Я. Карпова». Может быть внедрен на любом предприятии атомной отрасли.

Разработанный метод позволяет выполнить ретроспективную оценку выброса ^{14}C за каждый год эксплуатации любого предприятия атомной отрасли, в выбросах которого присутствует радиоуглерод. С помощью предложенного метода впервые выполнена оценка активности выброса ^{14}C ядерными реакторными установками АМБ-100 и АМБ-200 за весь период эксплуатации.

Впервые выполнена оценка радиационного воздействия выброса радиоуглерода в процессе эксплуатации ядерных реакторных установок АМБ-100, АМБ-200.

Впервые определены значения дополнительного облучения населения от выбросов ^{14}C в период выполнения ремонтных работ по замене графитовой кладки активной зоны реакторов типа РБМК Курской АЭС.

Получено свидетельство о регистрации программы для ЭВМ, позволяющей выполнять ретроспективную оценку годовых эффективных доз на население от выброса ^{14}C .

Методология и методы исследования

Отбор проб газообразных соединений ^{14}C проводился с помощью разработанного стенда методом барботаж – пропусканием газовой смеси через барботеры, наполненные 100 мл раствором NaOH (2,5 моль). Скорость прокачки составляла 0,5 л/мин.

Из гомогенизированной пробы ^{14}C отбирали 7 мл, смешивали их с 13 мл сцинтилляционного коктейля Optiphase HiSafe 3 (произв. Perkin Elmer, США). Активность ^{14}C в полученных образцах измеряли с помощью жидкостного сцинтилляционного спектрометра «Quantulus-1220» (произв. Perkin Elmer, США). Минимальная детектируемая активность (МДА) данного метода составляла 30 Бк/л для щелочного раствора из барботера.

Отбор проб древесных кернов осуществлялся с помощью бурава Пресслера. Разделение годовых колец выполнено совместно со специалистами Института экологии растений и животных УрО РАН, а химическая подготовка образцов, которая включала выделение целлюлозы из годовых колец, сжигание на абсорбционно-каталитической установке и получение чистого графитоподобного углерода – совместно со специалистами Института катализа им. Г. К. Борескова СО РАН. Активность ^{14}C в образцах измеряли с помощью ускорительного масс-спектрометра ИЯФ СО РАН. Порог чувствительности этого метода – $10^{-15} \text{ }^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$, требуемая при этом масса углеродного образца – 1–10 мг. Статистическая погрешность метода $\leq 1\%$ при времени измерения не менее 5 ч.

Положения, выносимые на защиту

1. Разработанный пробоотборный стенд обеспечивает отдельный отбор газообразного ^{14}C в органической и неорганической формах. Доля регистрируемой органической фракции ^{14}C в выбросах исследовательского ядерного реактора составляет от 30 до 84 %.

2. Разработанные и используемые в работе приборные и методические подходы определения удельной активности и химических форм ^{14}C позволили впервые выполнить ретроспективную оценку годового выброса радиоуглерода на протяжении всего жизненного цикла предприятия атомной отрасли.

3. Выполненный анализ показал, что при использовании подхода, учитывающего корзину питания региона, значения годовых эффективных доз не превышают 10 мкЗв от прошедшей деятельности рассмотренных предприятий атомной отрасли.

Достоверность результатов исследований базируется на всестороннем анализе выполненных ранее работ по предмету исследования, использовании поверенных и аттестованных СИ, стандартного и аттестованного программного обеспечения, современных средств и методов проведения исследований; подтверждается представительным объемом исходного материала, хорошей сходимостью результатов теоретических расчетов, моделирования с экспериментальными данными, а также лабораторной и опытной апробацией разработанной технологии.

Апробация работы

Результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на 12 научных конференциях: IX Международная школа-конференция молодых атомщиков Сибири (Томск, Россия, 2018), Двадцать пятая Всероссийская научная конференция студентов-физиков и молодых ученых (Севастополь, Россия, 2019), Биосферная совместимость атомной энергетики (Екатеринбург, Россия, 2018, 2022), Международная молодежная научная конференция «Физика. Технологии. Инновации. ФТИ» (Екатеринбург, Россия, 2019, 2021,

2023), Седьмая Международная конференция RAD 2019 (Херцег-Нови, Черногория), Международная конференция RAP 2019 (Белград, Сербия), Международная научная конференция «Ломоносов», (Москва, Россия, 2022), Всероссийская конференция «ЭКОЛОГИЯ: факты, гипотезы, модели» (Екатеринбург, Россия, 2022), VII научная конференции с международным участием «Хроническое радиационное воздействие: отдаленные медико-биологические эффекты» (Челябинск, Россия, 2022), «Ильинские чтения 2023» (Москва, Россия, 2023).

Публикации

Основные результаты диссертационной работы представлены в 10 научных работах, из них 5 статей опубликованы в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК РФ и Аттестационным советом УрФУ, в том числе 4 статьи проиндексированы в международных базах Scopus и Web of Science, получено свидетельство о государственной регистрации программы ЭВМ.

Структура и объем работы

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения, списков терминов и определений, сокращений и обозначений и списка литературы. Работа изложена на 115 страницах текста, содержит 27 таблиц, 30 рисунков, 2 приложения. Список литературы включает 80 источников.

ГЛАВА 1. ОСНОВНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ УГЛЕРОДА-14

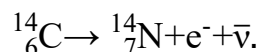
1.1. Открытие и свойства

В природе встречаются три изотопа углерода: углерод-12 (^{12}C), который составляет 99 % всего углерода на Земле, углерод-13 (^{13}C) – около 1 % и углерод-14 (^{14}C), распространенность которого 1–1,5 атома на 10^{12} атомов ^{12}C [11]. Изотопы ^{12}C и ^{13}C являются стабильными, тогда как ^{14}C – радиоактивный. Атом ^{14}C состоит из 6 протонов, 6 электронов и 8 нейтронов.

Первое предположение о существовании углерода-14 было сделано Францем Кюри в 1934 г. [12]. Американский ученый с помощью камеры Вильсона изучал треки частиц при облучении ядер азота источником быстрых нейтронов. Он выдвинул гипотезу, что треки большой длины соответствует протонам. Франц Кюри допустил протекание нескольких возможных ядерных реакций, среди которых была $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ [12]. В 1936 г. британские физики Уильям Бёрчем и Морис Голдхабер облучали ядра азота-14 медленными нейтронами в фотоэмульсии и также предположили, что данный процесс описывается реакцией $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ [13]. Реальное существование ^{14}C было подтверждено Самуэлем Рубеном и Мартином Каменом в 1940 г. в лаборатории Калифорнийского университета в Беркли в результате 120-часовой бомбардировки графита дейтронами на циклотроне [14].

В своем научном труде [14] Рубен и Камен оценили период полураспада ^{14}C в 10^3 – 10^5 лет. Позже, в 1946 г., были описаны две попытки измерения периода полураспада ^{14}C : 4700 ± 470 лет [15] и 5300 ± 800 лет [16]. Первое наиболее близкое к истинному значение 5720 ± 47 лет было получено в 1949 г. американскими учеными [17]. Среди этих ученых был химик Уиллард Франк Либби, который предложил радиоуглеродный метод датирования образцов, что принесло ему в 1960 г. Нобелевскую премию. В разработанной им методике использовалось значение периода полураспада ^{14}C 5568 ± 30 лет [18]. На сегодняшний день значение периода полураспада ^{14}C принято равным 5700 ± 30 лет [19].

Углерод-14 – β -излучатель образует в процессе полураспада азот-14:



Максимальная энергия бета-излучения составляет 156,48 кэВ, средняя – 49,16 кэВ [20]. Грамм углерода, содержащего 1 атом ${}^{14}\text{C}$ на 10^{12} атомов ${}^{12}\text{C}$, будет испускать 0,193 электрона в секунду.

1.2. Образование

Образование в природе

Основной фактор образования естественного ${}^{14}\text{C}$ – космическое излучение. Нейтроны вторичного космического излучения, главным образом тепловые, взаимодействуют с веществами атмосферы по следующим возможным реакциям: ${}^{14}\text{N}(n, p){}^{14}\text{C}$, ${}^{15}\text{N}(n, d){}^{14}\text{C}$, ${}^{16}\text{O}(n, 3p){}^{14}\text{C}$, ${}^{17}\text{O}(n, \alpha){}^{14}\text{C}$ и ${}^{13}\text{C}(n, \gamma){}^{14}\text{C}$. Ввиду большого сечения реакции и большой распространенности изотопа в природе (табл. 1.1), наиболее вероятным механизмом образования ${}^{14}\text{C}$ является реакция ${}^{14}\text{N}(n, p){}^{14}\text{C}$. Плотность потока тепловых нейтронов достигает максимума на высоте около 16 км и уменьшается более чем в 100 раз на уровне моря [21]. Поэтому образование естественного ${}^{14}\text{C}$ происходит главным образом в верхних слоях тропосферы и нижних слоях стратосферы, в зоне максимальной плотности потока нейтронов и достаточной плотности воздуха. По оценкам [8], ежегодно образуется около $1,4 \cdot 10^6$ ГБк, или 2,5 атома/($\text{м}^2 \cdot \text{с}$) естественного ${}^{14}\text{C}$, при этом общее содержание в атмосфере составляет около $1,4 \cdot 10^8$ ГБк, однако основная активность заключена в мировом океане – около 10^{10} ГБк.

На сегодняшний день равновесная концентрация ${}^{14}\text{C}$ в наземных биологических резервуарах составляет 100 рМС. Единицы измерения ${}^{14}\text{C}$ – рМС (Percent Modern Carbon) были приняты во второй половине XX века. 100 рМС \approx 227 Бк/г С соответствуют гипотетической удельной активности (УА) ${}^{14}\text{C}$ в атмосфере в 1950 г. без какого-либо человеческого воздействия [22].

Таблица 1.1. Некоторые ядерные реакции образования ^{14}C [8, 23]

№	Вид реакции	Сечение реакции, мбарн	Доля изотопа в природе, %
1	$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	1820 (тепловые)	99,635
2	$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	240 (тепловые)	0,037
3	$^{16}\text{O}(p, 3p)^{14}\text{C}$	2,2	99,963
4	$^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$	1,0	1,108
5	$^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$	0,9 (тепловые)	1,108
6	$^{15}\text{N}(n, d)^{14}\text{C}$	$2,5 \cdot 10^{-4}$	0,365
7	$^{16}\text{O}(n, ^3\text{He})^{14}\text{C}$	$5 \cdot 10^{-5}$	99,963

Испытания ядерного оружия

При взрыве ядерной бомбы образуется большое количество нейтронов, поглощающихся окружающей средой. Главным механизмом образования ^{14}C , как и в случае с естественным радиоуглеродом, является реакция $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$. Количество образовавшегося ^{14}C зависело от типа реакция взрыва ядерного устройства (деление или синтез), конструкционных материалов, мощности, места проведения (атмосферные, наземные или подземные). При атомных взрывах каждый акт деления сопровождается увеличением числа нейтронов на $\nu-1$, где ν – число нейтронов деления, и один нейтрон поглощается при делении. Незначительная часть образовавшихся нейтронов поглощается оболочками (с образованием плутония). Энергию (мощность) взрыва обычно выражают эквивалентной массой тротила (ТНТ): 1 млн т тротила соответствует энергии деления 60 кг урана или плутония и выделения $2,25 \cdot 10^{26}$ нейтронов [23].

В случае термоядерного оружия различают два типа бомб: с использованием жидкого дейтерия и с использованием химического соединения дейтерия с легким изотопом лития ^6Li . В первом случае выделение нейтронов на единицу мощности значительно больше. Во втором случае имеют место следующие основные реакции:



Эффективная вероятность для реакций (1.3) и (1.4) примерно в 100 раз больше, чем для реакций (1.1) и (1.2). Основная энергия взрыва выделяется при цикле быстрых реакций (3) и (4). Эти реакции взаимно друг друга поддерживают и оставляют без изменения суммарное количество нейтронов и ядер трития. Медленные реакции (1.1) и (1.2) служат начальным источником нейтронов и трития [23].

Оценка выхода энергии взрыва ядерных устройств и количество образовавшегося ${}^{14}\text{C}$ в период с 1945 по 1980 г. приведены в табл. 1.2.

Таблица 1.2. Мощность взорванных ядерных устройств и количество образовавшегося ${}^{14}\text{C}$ в период с 1945 по 1980 г. [24]

Годы испытаний	Количество испытаний	Мощность взрыва, Мт ТНТ		Выход ${}^{14}\text{C}$, ПБк		
		Деление	Синтез	Деление	Синтез	Всего
1945–1951	6	0,8	–	0,1	–	0,1
1952–1954	1	37	23	4,4	15,4	19,8
1955–1956	4	14	17	1,7	11,4	13,1
1957–1958	28	40	41	4,8	27,5	32,3
1959–1960	3	0,1	–	–	–	–
1961–1962	28	102	238	12,2	159,5	171,7
1963	0	–	–	–	–	–
1964–1969	2	10,6	9,9	1,3	6,6	7,9
1970–1974	4	10	2,2	1,2	1,5	2,7
1975	0	–	–	–	–	–
1976–1980	7	2,9	1,9	0,3	1,3	1,6
1945–1980	423	217,4	333,0	26,0	223,2	249,2

Проведение серии ядерных взрывов в 1950–60-е гг. привело к почти двукратному росту концентрации ^{14}C в атмосфере Северного полушария, для Южного – более чем в 1,5 раза (рис. 1.1). В связи с этим 5 августа 1963 г. в Москве был подписан «Договор о запрещении испытаний ядерного оружия в атмосфере, космическом пространстве и под водой». Великобритания, СССР и США являлись сторонами договора. Договор вступил в силу 10 октября 1963 г. и был открыт для подписания другими странами с 8 августа 1963 г. в Лондоне, Москве и Вашингтоне. Дальнейшие испытания проводились под землей.

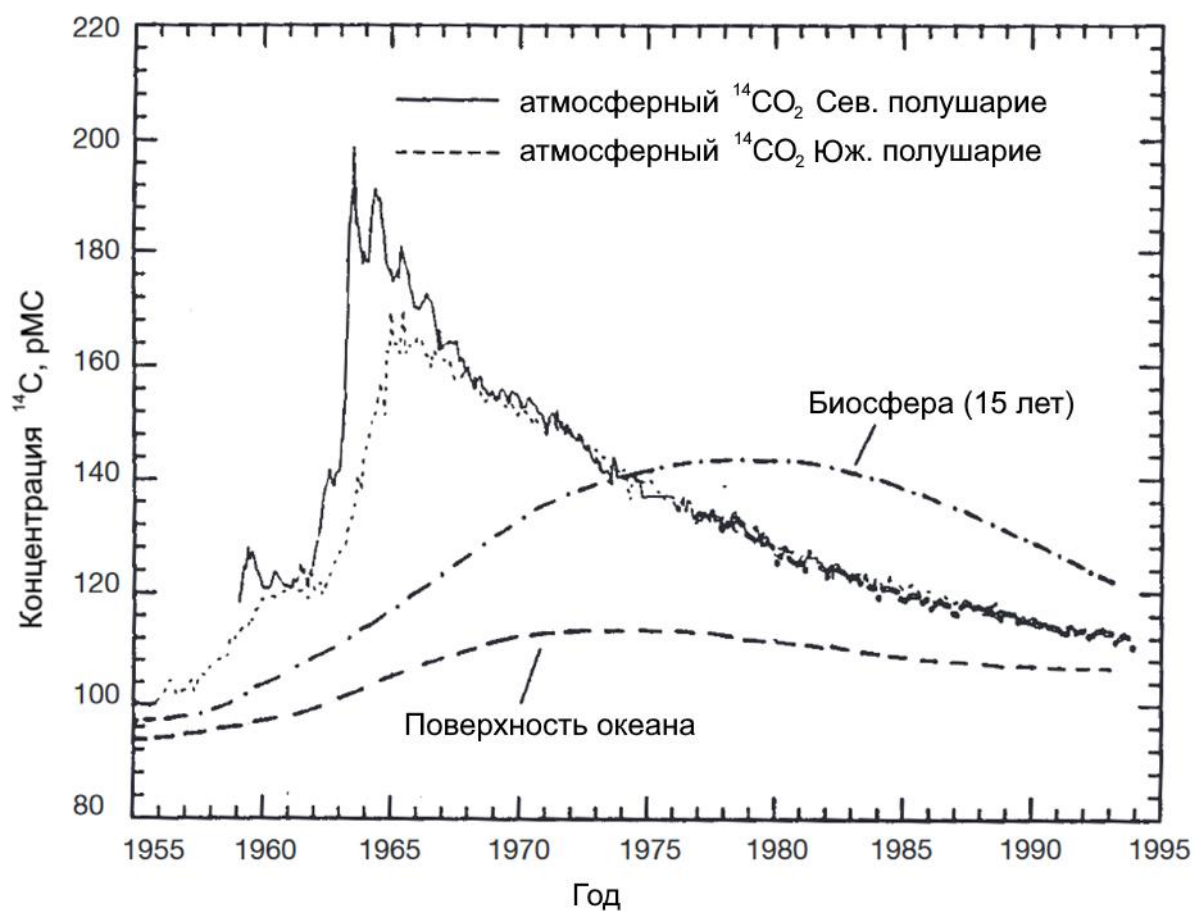


Рис. 1.1. Концентрация ^{14}C в атмосфере в 1955–1994 гг. [8]

1.3. Ядерные реакторы как источники ^{14}C

В настоящее время ядерные реакторы являются основными техногенными источниками поступления ^{14}C в атмосферу. Согласно отчету МАГАТЭ, по состоянию на 2023 год в 32 странах мира эксплуатируется 411 энергоблоков общей электрической мощностью около 370 ГВт [25]. На рис. 1.2 представлена информация о доле атомной энергетики в странах мира.

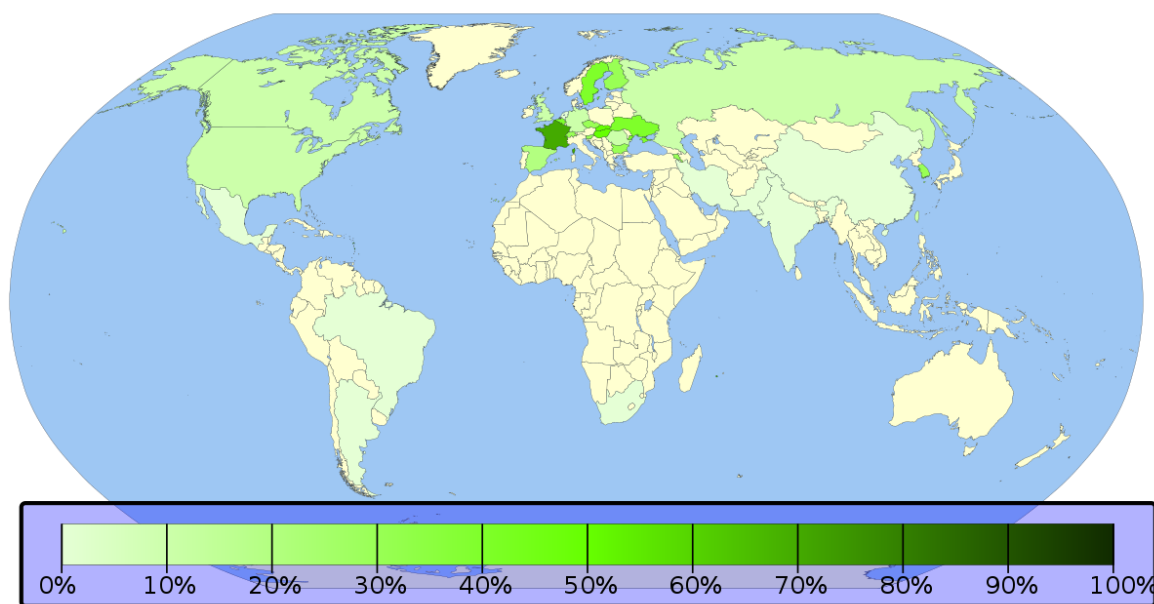


Рис. 1.2. Доля атомной энергетики в общем производстве электроэнергии в различных странах [25]

Согласно классификации МАГАТЭ [25], существуют следующие типы ядерных реакторов:

- PWR (pressurized water reactor) – водо-водяной ядерный реактор;
- BWR (boiling water reactor) – корпусной кипящий реактор;
- PHWR (pressurized heavy water reactor) – тяжеловодный ядерный реактор;
- GCR (gas-cooled reactor) – газоохлаждаемый реактор;
- LWGR (light water graphite reactor) – графито-водный ядерный реактор;

- FBR (fast breeder reactor) – реактор-размножитель на быстрых нейтронах;
- HTGR (high-temperature gas-cooled) – высокотемпературный газоохлаждаемый реактор;
- HWGCR (heavy-water-moderated gas-cooled reactor) – газоохлаждаемый реактор с тяжеловодным замедлителем;
- HWLWR (heavy-water-moderated, boiling light-water-cooled reactor) – кипящий реактор с замедлителем из тяжелой воды;
- SGHWR (steam-generating heavy-water reactor) – кипящий тяжеловодный реактор.

В табл. 1.3 приведено количество реакторов и доля в глобальном производстве электроэнергии каждым типом энергетических реакторов.

Таблица 1.3. Доля ядерных энергетических установок различного типа в мире [25]

Тип реактора	Количество энергоблоков, ед.	Доля от общего количества энергоблоков, %
PWR	302	73,7
BWR	41	10,0
PHWR	46	11,2
LWGR	11	2,7
GCR (AGR)	8	2,0
FBR	2	0,5

Самыми распространенными типами реакторных установок в мире являются PWR и BWR (суммарная доля данных типов составляет более 83 % от общего количества РУ).

В ядерных реакторах ^{14}C образуется в результате нейтронной активации атомов примесей, присутствующих в топливе, конструкционных материалах, теплоносителе и замедлителе, а также в результате тройного деления топлива.

В табл. 1.4 представлены наиболее вероятные реакции образования радиоуглерода.

Таблица 1.4. Основные реакции нейтронной активации и их сечения для различных энергетических групп нейтронов [26]

Реакция	Сечение реакции, барн		
	Тепловые	Промежуточные	Быстрые
$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	1,82	0,82	0,04
$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	0,24	0,11	0,10
$^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$	$0,90 \cdot 10^{-3}$	$5,93 \cdot 10^{-4}$	$5,16 \cdot 10^{-5}$

Большая часть ^{14}C образуется в активной зоне ядерного реактора из-за высокого потока нейтронов и высокой концентрации кислорода, однако главным образом он накапливается в топливе и оболочках тепловыделяющих элементов (ТВЭЛов) в виде твердых отходов и частично выделяется при переработке отработавшего ядерного топлива (ОЯТ). Образующийся в других конструкционных материалах ^{14}C в основном перерабатывается как твердые отходы при выводе из эксплуатации. Таким образом, ^{14}C , образующийся в замедлителе и теплоносителе – главный источник поступления ^{14}C в окружающую среду. Образующийся в теплоносителе ^{14}C (легкая или тяжелая вода) поступает в окружающую среду с выбросами в атмосферу или сбросами в виде жидких отходов. Некоторое количество ^{14}C в теплоносителе может улавливаться ионообменной смолой и затем перерабатываться как твердые отходы. Было подсчитано [27], что около $1,1 \cdot 10^{15}$ Бк ^{14}C ежегодно образуется на атомных электростанциях во всем мире, из них около $1,1 \cdot 10^{14}$ Бк·год $^{-1}$ ^{14}C выбрасывается в атмосферу в виде газообразных соединений со всех действующих атомных электростанций. При этом около $3,7 \cdot 10^{14}$ Бк·год $^{-1}$ ^{14}C как в газообразной, так и в жидкой форме поступает в окружающую среду от деятельности перерабатывающих заводов [27]. Количество и основной механизм образования ^{14}C на атомных электростанциях зависит от типа

реактора, степени обогащения урана в топливе, концентрации кислорода и азота в топливе, конструкционных материалах, замедлителе и теплоносителе.

В легководных ядерных реакторах (PWR, ВВЭР и ВВР) основными источниками образования ^{14}C являются:

- оксидное топливо, вследствие нейтронной активации ^{17}O и примесей ^{14}N и в результате тройного деления ядер топлива;
- оболочки ТВЭЛов – нейтронная активация примесей ^{14}N ;
- теплоноситель и замедлитель, вследствие нейтронной активации ^{17}O ;
- конструкционные материалы, вследствие активации примесей ^{13}C и ^{14}N ;

Главный механизм образования радиоуглерода в теплоносителе – $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$, поскольку концентрация ^{17}O в воде выше, чем ^{14}N . Образующийся в топливе ^{14}C в основном остается в ТВЭЛах, однако может диффундировать в теплоноситель через материал оболочки. В этом случае он станет важным источником выбросов ^{14}C в окружающую среду. PWR (ВВЭР) эксплуатируются в восстановительных химических условиях из-за присутствия избыточного водорода. Таким образом, большая часть ^{14}C в теплоносителе реактора находится в форме восстановленных (органических) соединений, таких как метан, ацетат и формиат (75–95 %), с небольшой долей $^{14}\text{CO}_2$ и ^{14}CO (5–25 %) [8, 26].

За счет добавки борной кислоты и буферизации в теплоносителе небольшая часть образующихся $^{14}\text{CO}_2$, ^{14}CO и органического ^{14}C остается растворенной, а большая часть $^{14}\text{CO}_2$, ^{14}CO и $^{14}\text{CH}_4$ поступает в атмосферу на разных этапах работы реактора. В первом контуре используется система ионного обмена для очистки теплоносителя от большинства продуктов коррозии. Часть растворенного ^{14}C , образующегося в воде теплоносителя, также улавливается ионообменной смолой, в основном это органические соединения, предположительно ацетат, формиат и карбонат [26]. Сообщалось, что большинство органических соединений ^{14}C в теплоносителе реактора (60 %) представляют собой газообразные соединения (т. е. метан), а остальные 40 % органического ^{14}C представляют собой растворенные нелетучие

органические соединения (например, формиат и ацетат). Стоит отметить, что ионообменная смола способна удалять лишь небольшую долю растворенного в теплоносителе ^{14}C (6–10 %), поэтому некоторая часть ^{14}C поступает в окружающую среду с жидкими сбросами. Скорость генерации ^{14}C в реакторах ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 представлена в табл 1.5.

Таблица 1.5. Скорость генерации ^{14}C в реакторах ВВЭР [24]

Технологическая среда	Ядерная реакция	Скорость генерации ^{14}C	
		ВВЭР-1000	ВВЭР-440
Теплоноситель, замедлитель	$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	$(1,1 - 3,3) \cdot 10^8$	$(0,6 - 1,9) \cdot 10^8$
	$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	$8,7 \cdot 10^8$	$3,1 \cdot 10^8$
	Всего	$(1,0 - 1,2) \cdot 10^9$	$(3,7 - 5,0) \cdot 10^8$
Топливо (обогащенный уран)	$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	$8,1 \cdot 10^8$	$4,0 \cdot 10^8$
	$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	$6,2 \cdot 10^8$	$2,4 \cdot 10^8$
	$^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$	$1,5 \cdot 10^4$	$5,6 \cdot 10^3$
	$^{235}\text{U}(n, f)^{14}\text{C}$	$6,0 \cdot 10^7$	$2,4 \cdot 10^7$
	Всего	$1,5 \cdot 10^9$	$6,6 \cdot 10^8$
Оболочка ТВЭЛ		$2,0 \cdot 10^9$	$8,5 \cdot 10^8$
Общая скорость образования ^{14}C		$4,6 \cdot 10^9$	$2,0 \cdot 10^9$

Образовавшийся в результате ядерных реакций ^{14}C изначально, наиболее вероятно, находится в виде отдельных атомов, поскольку энергия протона в реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ составляет около 40 кэВ, а альфа-частицы в реакции $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ в несколько раз больше. Такой энергии достаточно для разрыва всех химических связей и освобождения атома углерода. Одновременно с этим в теплоносителе в результате радиолиза и термолиза образуется большое количество ионизированных молекул и свободных атомов кислорода, водорода и других элементов. Вновь образовавшиеся атомы углерода легко окисляются до CO и CO_2 . Также возможно образование следующих соединений: H_2CO , CH_3OH , CH_4 , C_2H_2 и др., но выход их значительно меньше. При увеличении времени взаимодействия

относительный выход CO_2 возрастает, тогда как для других химических соединений он уменьшается. Однако, в реакторах PWR, благодаря разрежению водородного оболочечного газа, выход CO_2 составляет 10–20 %, а углеводороды типа C_nH_m – более 80 %.

В реакторах с кипящей водой (BWR) тепло, выделяемое в активной зоне реактора, передается теплоносителю, в результате чего вода кипит. Образовавшийся пар отделяется от воды и направляется на турбину. После расширения в турбине пар конденсируется в конденсаторе. После очистки в ионообменной колонне вода возвращается обратно в реактор. Поэтому ^{14}C и другие радионуклиды, образующиеся в теплоносителе, попадают в турбины. При этом соединения продуктов коррозии концентрируются в воде теплоносителя и осаждаются на поверхности ТВЭЛов (образование отложений), что приводит к относительно большому количеству ^{14}C в теплоносителе реакторов BWR. Образующийся в теплоносителе ^{14}C также является основным источником ^{14}C , выбрасываемого из реакторов BWR. В отличие от PWR, один контур в BWR генерирует непрерывный выброс ^{14}C через трубу. Из-за окислительных химических условий реакторов BWR ^{14}C , образующийся в теплоносителе, находится в основном в форме $^{14}\text{CO}_2$ с небольшой долей органических соединений (5–20%). Таким образом, ^{14}C , выбрасываемый BWR, в основном находится в форме $^{14}\text{CO}_2$. Небольшая часть ^{14}C , растворенного в теплоносителе (HCO_3^-), может быть удалена в системе ионообменной очистки. Однако сообщалось, что в ионообменной смоле удаляется лишь очень небольшая часть ^{14}C из теплоносителя реактора BWR (< 1 %). Поэтому некоторая часть ^{14}C также поступает в окружающую среду с жидкими сбросами. Типичная величина выброса ^{14}C реактором типа BWR оценивается примерно в 260 ГБк/год, что выше, чем в реакторе PWR [8].

В тяжеловодных реакторах (HWR) тяжелая вода (D_2O) используется в качестве теплоносителя и/или замедлителя, реактор CANDU является коммерческим тяжеловодным реактором. Существует также множество исследовательских реакторов, использующих тяжелую воду в качестве

теплоносителя и графит в качестве замедлителя для получения тепловых спектров нейтронов для эксперимента. В реакторах CANDU топливные элементы установлены в бак реактора, заполненный тяжелой водой (теплоносителем), прокачиваемой через закрытую напорную трубу (первый контур) для передачи тепла в парогенератор, где пар производится во втором контуре, содержащем легкую воду. Кольцевое пространство между каждой напорной трубой и ее внешней трубой заполнено газообразным CO_2 для изоляции холодного замедлителя от системы теплопередачи [26]. Радиоуглерод в НWR в основном образуется в замедлителе, системе теплоносителя, топливных элементах и системе межтрубного газа. Из-за повышенного содержания ^{17}O в тяжелой воде количество образующегося ^{14}C в тяжеловодных реакторах обычно выше, чем легководных. Большая часть ^{14}C улавливается ионообменной смолой в системе очистки тяжелой воды, что приводит к высокой концентрации ^{14}C – 1,7–7,9 ТБк·м⁻³ в системе очистки замедлителя. Выброс газообразного ^{14}C происходит в основном из системы замедлителя с небольшой долей из кольцевой системы, использующей CO_2 . Однако при использовании N_2 в качестве продувочного газа ожидается большее количество образовавшегося ^{14}C . Выбросы ^{14}C в атмосферу из двух канадских тяжеловодных реакторов CANDU (600 МВт) составили 121–720 ГБк/год – Пойнт-Лепро и 277–2920 ГБк/год – Джентилли-2 [8, 28]. В реакторе CANDU большая газообразного ^{14}C поступает в атмосферу в форме $^{14}\text{CO}_2$ (65,5–97,5 %), относительно небольшая доля – в виде органического углеводорода (2,5–34,4 %), и очень малая доля – в форме ^{14}CO (0,01–3,7 %) [8].

В реакторах Magnox, AGR (газоохлаждаемые реакторы с графитовым замедлителем) и реакторах РБМК в качестве замедлителя используется графит. В реакторах Magnox и AGR в качестве теплоносителя используется газ CO_2 , тогда как в реакторах РБМК – легкая вода. В РБМК-1000 для охлаждения графита и уменьшения его окисления внутренняя полость реактора продувается гелиево-азотной смесью, циркулирующей по замкнутому контуру. В графитовых реакторах ^{14}C в основном образуется в замедлителе в

результате реакции $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ и $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$. Однако большая часть образовавшегося ^{14}C остается в графите при работе реактора и не выбрасывается в атмосферу. Во время работы АGR некоторое количество ^{14}C , образующегося в графите, может выбрасываться в виде $^{14}\text{CO}_2$ из-за коррозии графита и изотопного обмена между CO_2 и графитом, что увеличивает концентрацию ^{14}C в теплоносителе. Между тем азотная примесь – еще один источник ^{14}C в теплоносителе. Концентрация азота в газовом теплоносителе CO_2 является ключевым фактором, влияющим на содержание ^{14}C в теплоносителе. Большая часть выбросов газообразного ^{14}C из реакторов с газовым теплоносителем происходит в результате очистки контуров CO_2 путем утечки или во время периодической плановой продувки. Из всего образующегося ^{14}C в реакторах Magnox и АGR выбрасывается только 3 и 6 % соответственно. Сообщалось, что атмосферный выброс ^{14}C из реактора типа Magnox во Франции (реактор Chinon 2, 200 МВт) составлял $370 \text{ ГБк} \cdot \text{год}^{-1}$ [29]. В реакторах РБМК большая часть выбрасываемого газообразного ^{14}C образуется в результате реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$, вызванной большим количеством примесного азота в графите. Предполагается, что основная часть ^{14}C , выбрасываемого из РБМК, находится в форме $^{14}\text{CO}_2$. Подсчитано, что всего реактором РБМК выбрасывается $1000 \pm 300 \text{ ГБк/ГВт(эл.)}/\text{год}$ [29]. В табл. 1.6. представлены скорости генерации ^{14}C в реакторе РБМК-1000.

Таблица 1.6. Скорость образования ^{14}C в реакторе РБМК-1000 (расчетные значения) [24]

Технологическая среда	Ядерная реакция	Скорость генерации ^{14}C , Бк/сут
Теплоноситель (вода)	$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	$7,9 \cdot 10^6$
	$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	$2,8 \cdot 10^8$
	Всего	$2,9 \cdot 10^8$
Замедлитель (графит)	$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	$(0,7 - 2,2) \cdot 10^{10} *$
Охлаждающая смесь He-N ₂		
Примесь азота в графите	$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	$2,6 \cdot 10^{10} **$
Графит	$^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$	$1,4 \cdot 10^{10}$
	Всего	$(4,7 - 6,2) \cdot 10^{10}$
Топливо (обогащенный уран)	$^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$	$(2,6 - 5,2) \cdot 10^9 ***$
	$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	$1,3 \cdot 10^9$
	$^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$	$3 \cdot 10^4$
	$^{235}\text{U}(n, f)^{14}\text{C}$	$6 \cdot 10^7$
	Всего	$(4,0 - 6,5) \cdot 10^9$
Оболочки ТВЭЛ		$(5,2 - 8,5) \cdot 10^9 ****$
Общая скорость генерации в РБМК-1000		$(5,5 - 7,8) \cdot 10^{10}$
<p>* Разброс за счет содержания азота в охлаждающем газе (10–30 %).</p> <p>** При содержании примеси азота в графите 0,001 %.</p> <p>*** Разброс за счет примеси азота в топливе по паспортным данным (0,001–0,002 %).</p> <p>**** Оценочное значение [24]</p>		

Из табл 1.6 видно, что основное количество ^{14}C образуется в графите реактора и охлаждающем его газе – около 80 %. В топливе примерно 7–8 %, в оболочках ТВЭЛов 9–10%, в теплоносителе – менее 1 %. Основная реакция образования ^{14}C в теплоносителе – $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ (97 %), в замедлителе – $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ (70–75 %), при этом около 50 % ^{14}C образуется на примеси азота в

графите. Уменьшение содержания азота в охлаждающей смеси либо использование других хладагентов позволит снизить суммарную активность выброса ^{14}C .

В ядерном топливе основное количество ^{14}C образуется по реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$. Уменьшая содержание примеси азота в топливе, можно снизить выбросы ^{14}C на заводах переработки ОЯТ.

1.4. Анализ выбросов ^{14}C атомными электростанциями Европы

Для оценки поступления углерода-14 в атмосферу при штатной работе АЭС были рассчитаны удельные показатели выброса, которые позволяют сравнивать выбросы различных станций во времени независимо от их мощности. Удельные показатели вычислены на основе отчетной информации Европейской комиссии о годовых выбросах АЭС Европы [5] и данных МАГАТЭ о выработке электрической энергии на АЭС [25]. Размерность показателя – ГБк/(ГВт·ч) – выбрана для демонстрации масштаба выброса и производства энергии. С помощью такого показателя можно выполнять сравнение между АЭС с различными типами РУ.

В базе данных Европейской комиссии [5] содержится доступная информация о газообразных выбросах углерода-14 для 70 станций в 12 странах Европы за период с 1995 по 2017 г. Объем выборок составил 1 132 записи. В работе были использованы следующие типы РУ: PWR, ВВЭР, BWR, GCR, AGR (усовершенствованный тип газоохлаждаемых реакторов). Для реакторов типа FBR и LWGR из-за недостатка данных по выбросам углерода-14 был взят удельный показатель активности за период 1990–1994 гг. [30]. Для реактора PHWR расчет удельных показателей выполнен на основе выбросов одной станции – Cernavoda (Румыния).

Гипотеза о том, что удельные показатели выброса углерода-14 описываются нормальным распределением, была отклонена критериями Шапиро – Уилка и Колмогорова – Смирнова [31, 32]. По всем показателям заметно значительное превышение средних значений над медианными, что указывает на сильное отклонение распределений вероятностей исследуемых

данных от нормальной кривой. В связи с этим было решено использовать медианные удельные показатели выброса (табл. 1.7), так как медиана менее чувствительна к статистическим выбросам, в отличие от среднего. Динамика медианных удельных показателей представлена на рис. 1.3.

Таблица 1.7. Значения медиан годовых удельных показателей выбросов ^{14}C европейскими АЭС

Тип РУ	Кол-во станций	Медианы годовых удельных показателей выбросов ^{14}C , ГБк/(ГВт·ч)					Весь период
		1995–1999	2000–2004	2005–2009	2010–2014	2015–2017	
AGR	7	0,134	0,140	0,177	0,188	0,191	0,163
BWR	13	0,054	0,063	0,063	0,065	0,073	0,063
FBR	н/д	н/д	н/д	н/д	н/д	н/д	0,014
GCR	5	0,385	0,525	0,484	0,261	0,292	0,415
LWGR	н/д	н/д	н/д	н/д	н/д	н/д	0,148
PHWR	1	н/д	н/д	0,053	0,038	0,038	0,042
PWR	37	0,019	0,024	0,024	0,024	0,024	0,024
ВВЭР	7	0,030	0,042	0,046	0,051	0,050	0,047
Итого	68	0,054	0,063	0,063	0,065	0,060	0,035

Из табл. 1.7 видно, что наибольший удельный показатель выброса ^{14}C имеют газоохлаждаемые реакторы (GCR) и их второе поколение – продвинутые газоохлаждаемые реакторы (AGR). Это привело к тому, что на сегодняшний момент в Европе функционирует одна АЭС с газоохлаждаемым реактором старого типа – Wylfa (Великобритания).

Значимость временных линейных тенденций удельных показателей для радиоуглерода оценены с помощью ранговых коэффициентов Спирмена (табл. 1.8), уровень значимости тренда при этом составил 0,05 [33].

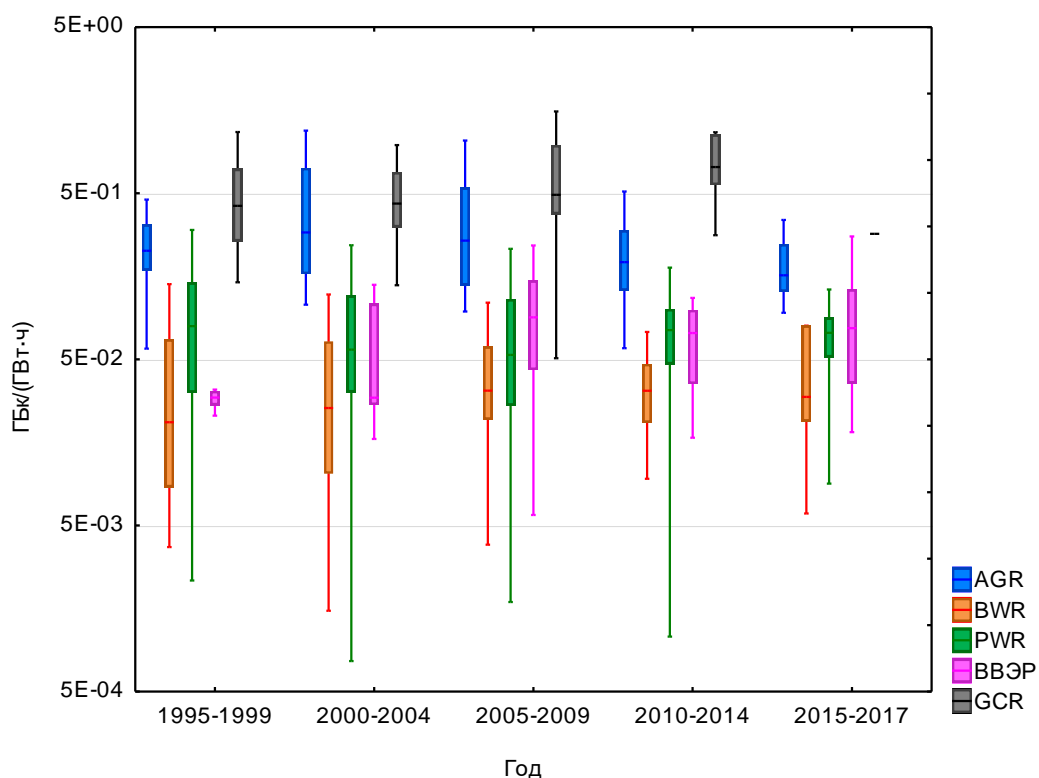


Рис. 1.3. Динамика удельных показателей выбросов радиоуглерода всеми типами РУ

Таблица 1.8. Результаты оценки линейных трендов в динамике удельных показателей выброса ^{14}C европейскими АЭС с 1995 по 2017 гг.

Тип РУ	Число наблюдений, N	критерий Спирмена, R	p-значение	Тренд
AGR	152	0,342	$1,6 \cdot 10^{-5}$	Рост
BWR	178	0,107	0,1533	Отсутствует
GCR	66	-0,071	0,5735	Отсутствует
PWR	616	-0,028	0,4851	Отсутствует
BBЭР	107	0,310	0,0011	Рост
Все РУ	1119	-0,130	$1,3 \cdot 10^{-5}$	Снижение

Распределение АЭС Европы по категориям с наилучшей, устойчивой и наихудшей практикой выброса

Категории АЭС с наилучшей, наихудшей и устойчивой практикой выбросов в атмосферу углерода-14 определены по границам квартильных размахов распределений вероятностей удельных показателей (q_1 и q_3 – 25-я и 75-я процентиля соответственно), вычисленных по совокупности всех станций Европы в период с 1995 по 2017 г. По временным рядам ежегодных показателей $Q_{i,j}$, ГБк/(ГВт·ч) каждой i -й станции за j -й год присваивался ранг в зависимости от попадания в соответствующий квартиль:

$$R_{i,j} = \begin{cases} 1, & \text{если } Q_{i,j} \leq q_1 \\ 2, & \text{если } q_1 < Q_{i,j} \leq q_3 \\ 3, & \text{если } Q_{i,j} > q_3. \end{cases} \quad (1.5)$$

Значения рангов R_i^{cp} , усредненных за весь период наблюдений по каждой станции (рис. 1.4), косвенно указывают на частоту попадания $Q_{i,j}$ в соответствующие квартили и позволяют классифицировать АЭС по искомым категориям.

Границы категорий по средним рангам определены экспертно и составляют:

- 1,0–1,5 для наилучших практик ($Q_{i,j}$ чаще попадают в 1-й квартиль);
- 1,5–2,5 – для устойчивых практик (2-й и 3-й квартили);
- 2,5–3,0 – для наихудших практик (преимущественно 4-й квартиль).

Значения квартильных размахов q_1 и q_3 указаны в табл. 1.9.

Таблица 1.9. Статистическое описание годовых удельных показателей выброса ¹⁴C Европейскими АЭС за период с 1995 по 2017 гг.

Параметр	Значение
N наблюдений	1119
Среднее, ГБк/(ГВт·ч)	0,087
Медиана, ГБк/(ГВт·ч)	0,035
Нижний квартиль q_1 , ГБк/(ГВт·ч)	0,024
Верхний квартиль q_3 , ГБк/(ГВт·ч)	0,075
Минимум, ГБк/(ГВт·ч)	$5,30 \cdot 10^{-4}$
Максимум, ГБк/(ГВт·ч)	1,328
Стандарт. откл-е, ГБк/(ГВт·ч)	0,162

В табл. 1.10 представлено количество АЭС с различными типами РУ в каждой из категорий.

Таблица 1.10. Количественное распределение АЭС Европы по группам с наилучшей, устойчивой и наихудшей практикой выброса ¹⁴C

Тип РУ	Наилучшие практики	Устойчивые практики	Наихудшие практики
AGR	0	0	7 (100 %)
BWR	0	10 (77 %)	3 (23 %)
GCR	0	0	5 (100 %)
PWR	16 (51 %)	21 (49 %)	0
ВВЭР	0	7 (100 %)	0

Из табл. 1.10 видно, что в категории с наилучшей практикой ожидаемо доминируют реакторные установки, имеющие наименьший удельный показатель выброса радиоуглерода: PWR (49 % от всех АЭС Европы данного типа). На АЭС Trillo (Испания) с РУ типа PWR удельный показатель выброса

углерода-14 с 1995 по 2017 г. не превысил 0,024 ГБк/(ГВт·ч) (границу квартиля q_1).

Категории с устойчивой практикой для выбросов ^{14}C преимущественно представлены АЭС с реактором BWR (77 % от всех АЭС Европы данного типа).

В категорию «Наихудшие практики» в основном попали РУ типа GCR и их второе поколение – AGR. Это объясняется тем, что газоохлаждаемые реакторы имеют наибольший удельный показатель выброса данных радионуклидов. Данный тип реакторных установок не получил широкого распространения и представлен исключительно в Великобритании.

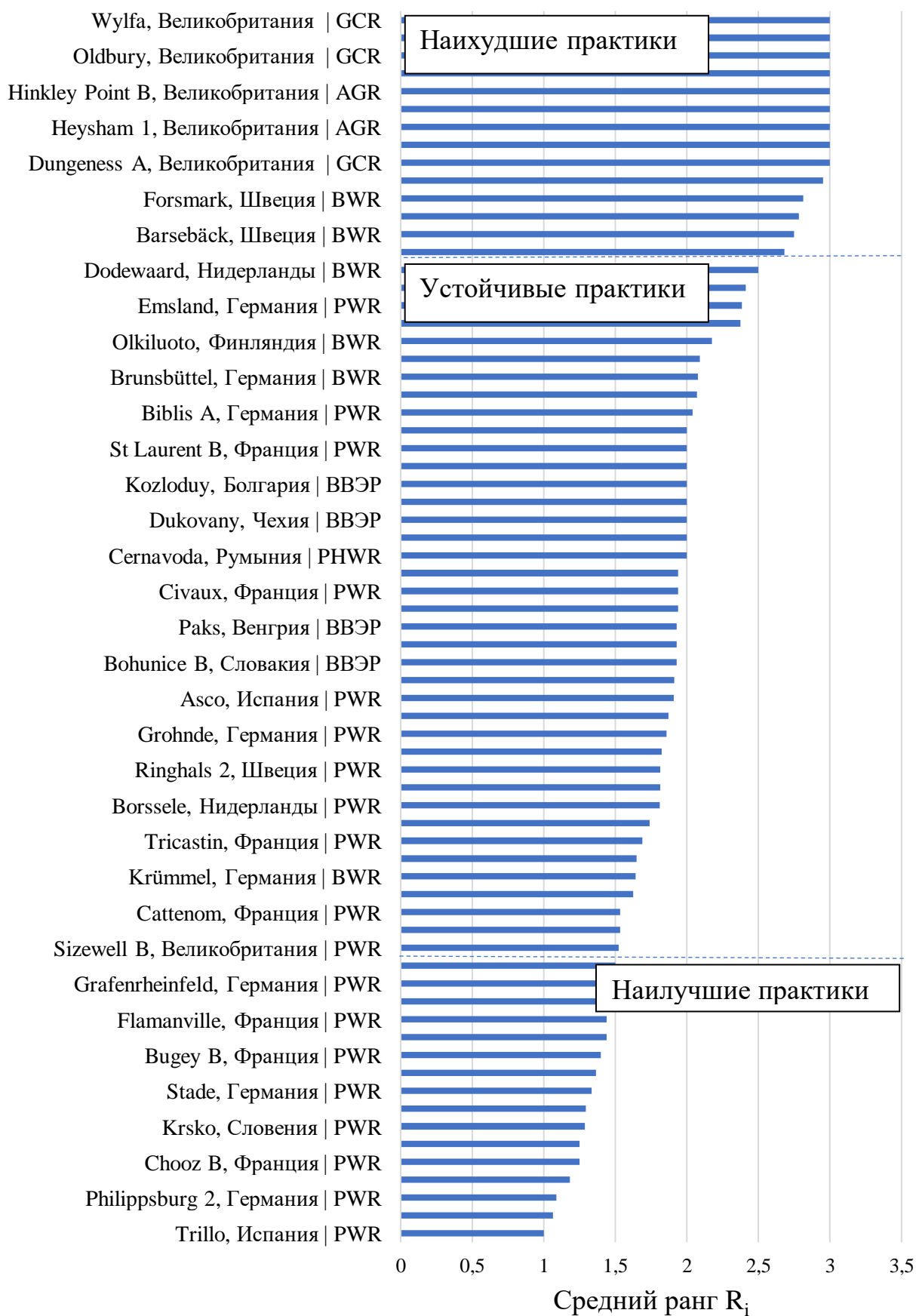


Рис. 1.4. Категории АЭС Европы по средним рангам годовых удельных выбросов углерода-14 в период с 1995 по 2017 г.

1.5. Методы отбора ^{14}C

Мониторинг активности ^{14}C в выбросах объектов использования атомной энергии важен с точки зрения радиационной безопасности. Соблюдение нормативов предельно допустимых выбросов – мера обеспечения радиационной безопасности. По данным радиационно-технических обследований АЭС России [4], радиоуглерод вошел в перечень основных дозообразующих радионуклидов для всех типов ядерных реакторов. Анализ выбросов АЭС Европы показал, что вклад ^{14}C в эффективную дозу составляет от 14 до 94 % [6].

Газообразный ^{14}C выбрасывается через вентиляционные трубы АЭС в виде различных химических соединений: $^{14}\text{CO}_2$, ^{14}CO и углеводородов (C_nH_m). В выбросах PWR(ВВЭР) большая часть ^{14}C представлена в виде углеводородов, в основном CH_4 и C_2H_6 , в то время как в энергетических реакторах других типов (BWR, РБМК) ^{14}C выбрасывается в основном в виде $^{14}\text{CO}_2$. Доля ^{14}CO в выбросах всех типов энергетических реакторов незначительна.

Отбор $^{14}\text{CO}_2$ в вентиляционной трубе предприятий атомной отрасли наиболее часто осуществляется методом барботирования, т. е. газовоздушная смесь (ГВС) из вентиляционной системы предприятия прокачивается через заполненный абсорбентом барботер. Наиболее часто применяемыми абсорбентами являются раствор NaOH ($0,8\text{--}4,0$ моль·л $^{-1}$), гранулы NaOH и органический амин (например, CarboSorb). Эффективность сорбции зависит от многих параметров, таких как конструкция барботера, скорость потока воздуха, абсорбирующие компоненты и их концентрация, а также от количества абсорбирующего раствора и объема прокаченной смеси. Скорость потока должна поддерживаться на низком уровне, чтобы обеспечить достаточное время контакта газовоздушной смеси с раствором абсорбента. По сравнению с раствором NaOH раствор CarboSorb лучше совместим с органическими сцинтилляционными коктейлями и, следовательно, имеет низкий эффект гашения при измерении ^{14}C с помощью метода жидкостной

сцинтилляционной спектрометрии (ЖСС). Основным методом отбора всех химических соединений ^{14}C (органических и CO) основан на превращении ^{14}C в $^{14}\text{CO}_2$ и последующем улавливании образовавшегося $^{14}\text{CO}_2$ с использованием тех же методов, что и при отборе $^{14}\text{CO}_2$. Органический ^{14}C обычно преобразуется в CO_2 путем окисления в присутствии O_2 и катализатора, в этом случае ^{14}CO также окисляется до $^{14}\text{CO}_2$. На практике это реализуется путем прокачки ГВС через трубку, заполненную катализатором и нагреванием в печи до 400–800 °С, где все виды углеводородов и ^{14}CO окисляются до $^{14}\text{CO}_2$. Затем отходящий газ из трубки улавливается в барботере, наполненном NaOH . Наиболее часто используемые катализаторы – платина (Pt) и палладий (Pd). В работе [34] сообщалось, что более 99,7 % органических соединений ^{14}C можно преобразовать в $^{14}\text{CO}_2$, используя Pd в качестве катализатора и нагревая до 600 °С. В качестве катализатора/окислителя также используется CuO для превращения органического ^{14}C и ^{14}CO в $^{14}\text{CO}_2$ при нагревании до 600 °С, образовавшийся CO_2 затем улавливается моноэтаноламином [35]. Эффективность окисления и улавливания $^{14}\text{CO}_2$ этим методом составляет > 99,3 % и > 97,5% соответственно [35]. В этом методе поток O_2 не нужен, так как CuO обеспечивает кислород для окисления. Примеры отбора проб газообразных соединений радиоуглерода представлены в работах [36–41].

Во многих системах контроля ^{14}C в выбросах предприятий атомной отрасли газовоздушная смесь сначала проходит через систему барботеров, где CO_2 полностью улавливается, затем смесь из последнего барботера проходит через трубку, заполненную катализатором Pd/Pt , нагревается до 400–800 °С для превращения органического ^{14}C и ^{14}CO в $^{14}\text{CO}_2$, который затем улавливается во второй системе барботеров. На рис. 1.5 показан пример пробоотборного устройства (Nague 7000 ^{14}C , SDEC, Франция) для последовательного сбора $^{14}\text{CO}_2$ (барботеры 1 и 2) и ^{14}CO плюс органические соединения ^{14}C (барботеры 3 и 4).

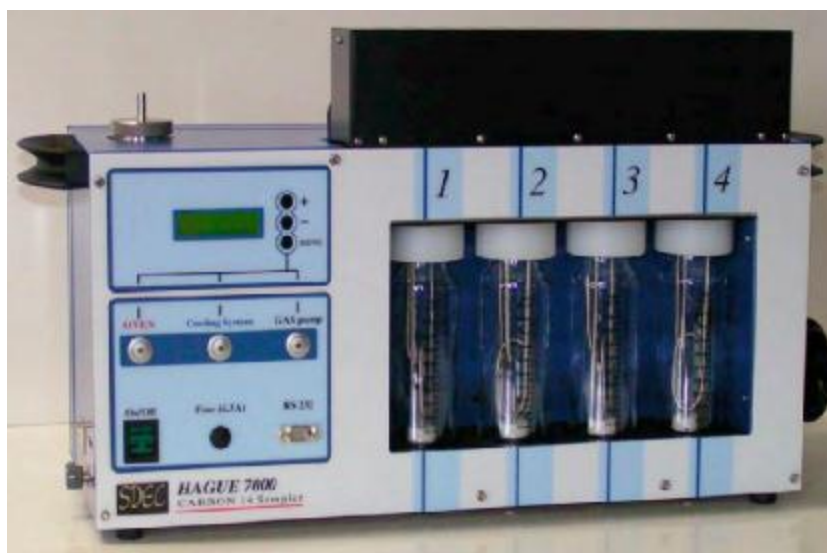


Рис.1.5. Внешний вид пробоотборного устройства Hague-7000

На АЭС России, как правило, используются комбинированные установки, позволяющие выполнять отбор ^{14}C и ^3H в виде органической и неорганической фракций. Примерами таких устройств являются V3H14C (VF, Чехия) (рис 1.6), TASC-НТО-НТ-C14 (Overhoff Technology Corporation, США) (рис 1.7), УОТ-02 (ПО «Маяк», Россия) (рис 1.8). Общим недостатком представленных установок является отсутствие регулировки температурного режима, что может привести к неполному окислению органических соединений газообразного радиоуглерода, и, как следствие, заниженным значениям объемной активности. Также большинство установок являются стационарными, поскольку с их помощью оценивается величина общего выброса ^{14}C предприятием. Отсутствие высокой степени мобильности не позволяет оценить активность выброса ^{14}C на отдельных узлах технологической цепочки.



Рис. 1.6 – Внешний вид ТАСС-НТО-НТ-С14



Рис.1.7. Внешний вид VЗН14С

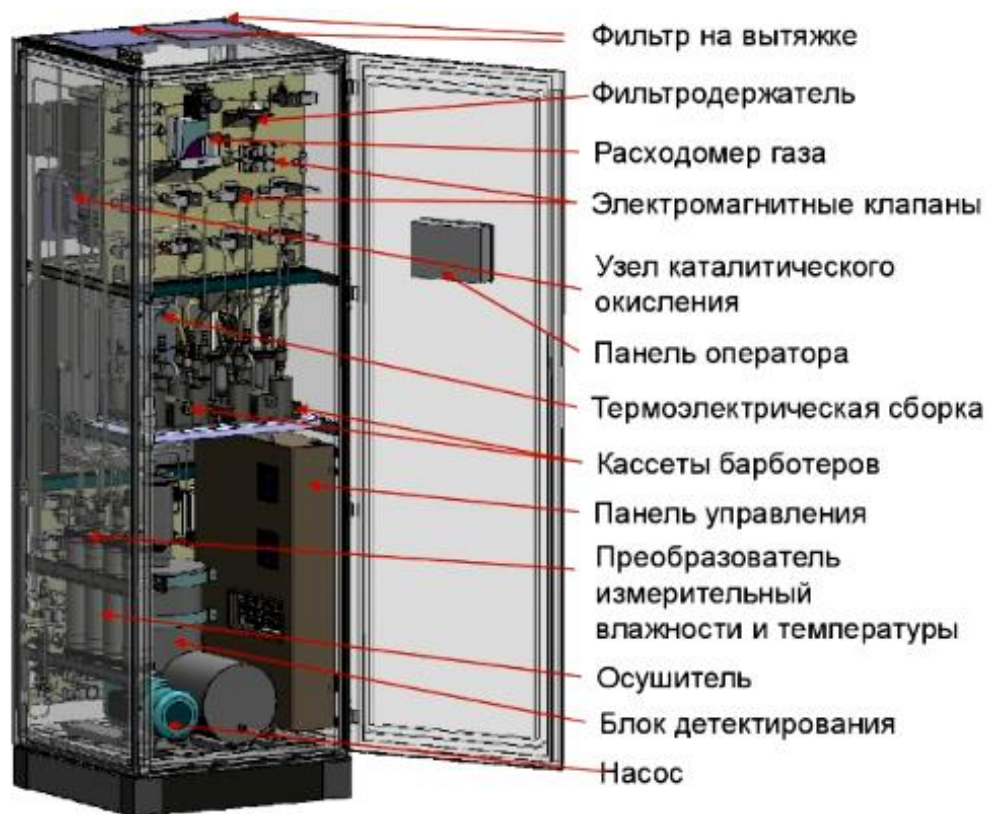


Рис. 1.8. Устройство УОТ-02

1.6. Методы измерения активности радиоуглерода

Измерение активности углерода-14 связано с трудностями в регистрации бета-частиц, поскольку их максимальная энергия составляет 156 кэВ. Для бета-частиц с такой энергией не подойдут обычные твердотельные детекторы (сцинтилляционные, полупроводниковые), вдобавок малая энергия β -частиц не позволяет использовать для измерения образцы большого объема ввиду самопоглощения. В связи с этим методы измерения радиоуглерода должны обладать: высокой эффективностью регистрации низкоэнергетического β -излучения, низким значением фоновой составляющей приборов и хорошей стабильностью аппаратуры.

Наиболее распространенный метод измерения ^{14}C на сегодняшний день – ЖСС. Среди других методов ускорительная масс-спектрометрия (УМС) – наиболее чувствительный метод измерения ^{14}C , обычно используется для анализа образцов, активность которых близка к фоновой. Оба этих метода подразумевают предварительную пробоподготовку образцов, содержащих

^{14}C . Ионизационная камера и пропорциональный счетчик используются для прямого измерения газообразного ^{14}C ($^{14}\text{CO}_2$, CH_4) в режиме реального времени на объектах использования атомной энергии.

Счетчик Либби

В 1946 г. американский физик У. Либби разработал первую аппаратуру для измерения ^{14}C . Для этого он использовал специальную систему, в которой счетчик Гейгера – Мюллера с латунными стенками, был окружен другими счетчиками, включенными с ним в схему антисовпадений (рис. 1.9, 1.10). Образец в виде чистого углерода (сажа) наносился на тонкостенный цилиндр и помещался внутрь центрального счетчика. Таким образом применение внешних счетчиков позволило избежать регистрации ложных импульсов, и центральный счетчик регистрировал только частицы, испускаемые счетным образцом [24].

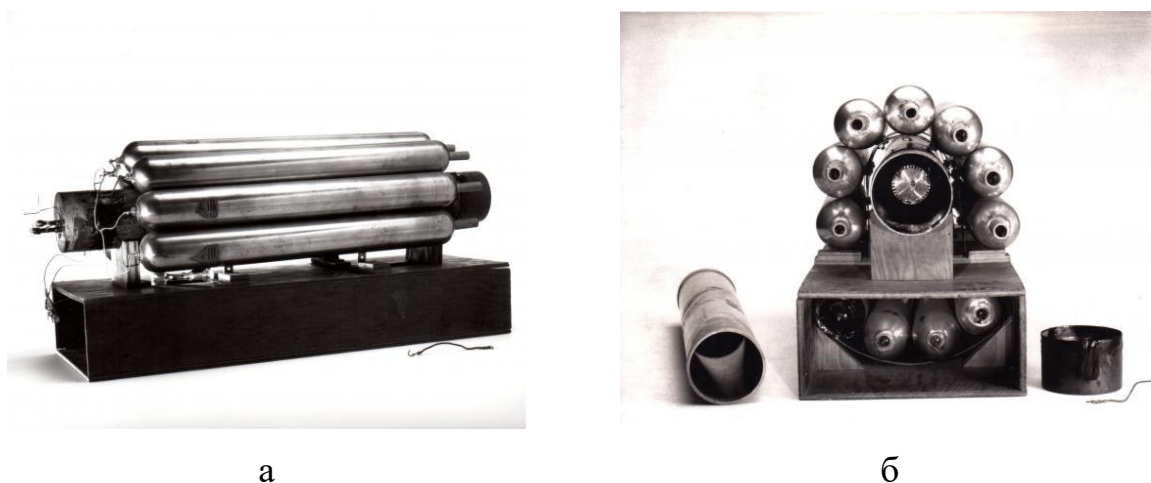


Рис. 1.9 – Внешний вид счетчика Либби: а – с закрытой крышкой, б – с открытой [42]

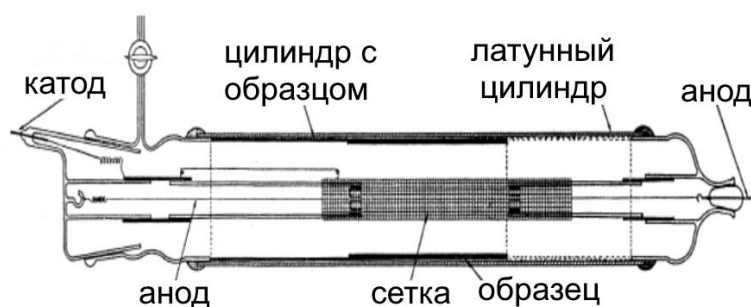
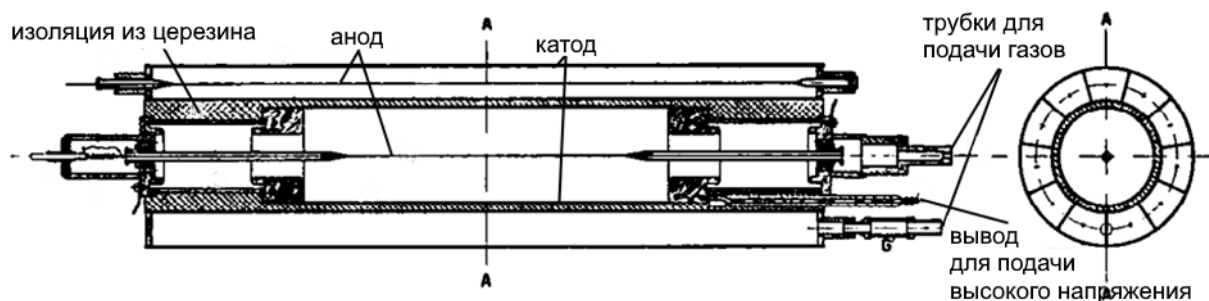


Рис. 1.10 – Устройство счетчика Либби [43, 44]

В настоящее время данный метод не применяется, так как имеет ряд недостатков: низкая эффективность регистрации (~5,5%), трудность получения химически чистого углерода (свободного от радикалов и примесей), большая вероятность загрязнения приготовленного счетного образца радиоактивными веществами, находящимися в воздухе.

Пропорциональные газовые счетчики

В 50-е гг. XX века на смену методу, предложенному Либби, пришел метод газовых пропорциональных счетчиков. Главным их отличием было то, что выделенный из образца газ $^{14}\text{CO}_2$ помещался непосредственно в чувствительный объем детектора. В работе [45] вместо кольца из счетчиков Гейгера – Мюллера использовались две концентрические трубки, между которыми на равных расстояниях были размещены 11 анодных нитей (рис. 1.11). Преимущество данной конструкции перед кольцом из отдельных счетчиков состоит в том, что она обеспечивает устойчивую систему и одинаковый пусковой потенциал всех счетчиков.



Катоды пропорциональных счетчиков чаще всего изготавливались из материалов, содержащих малое количество радиоактивных примесей, например, меди или нержавеющей стали. Для снижения «эффекта памяти» внутреннюю поверхность катода покрывали веществами, не вступающими в реакцию с газами. Для повышения чувствительности метода могут применяться либо счетчики большого объема до 10 л, либо счетчики с повышенным давлением рабочего газа (2–10 атм.).

Несмотря на все достоинства пропорциональных счетчиков (высокая эффективность регистрации, низкий фон), они имеют несколько недостатков. Существуют трудности при очистке счетного газа от радиоактивных примесей и в преодолении «эффекта памяти». Применение пропорциональных счетчиков большого объема приведет к увеличению размеров и массы элементов защиты.

Как правило, для счетчика объемом 1 л, заполненного CO_2 при атмосферном давлении, требуется 0,5 г углерода в образце. Данное требование является критичным для многих областей исследования, особенно археологии, где обычно доступны миллиграммовые образцы. Поэтому актуальной стала разработка микросчетчиков объемом несколько миллилитров, которым требовались единицы миллиграммов углерода в образце. Недостатком таких счетчиков было время измерения – до 1 месяца. Микросчетчики не получили широкого распространения ввиду быстроразвивающегося метода УМС.

Жидкостная сцинтилляционная спектрометрия

Метод ЖСС – это стандартный лабораторный метод количественной оценки радиоактивности низкоэнергетических радиоизотопов, в основном бета-излучающих. Процесс жидкостной сцинтилляции (рис. 1.12) включает передачу кинетической энергии от бета-частиц, испускаемых радионуклидом, к молекулам растворителя. Эти возбужденные молекулы растворителя затем передают свою энергию молекулам сцинтиллятора. Когда эти молекулы возбуждаются, они возвращаются в свое стабильное энергетическое состояние, излучая фотоны с определенной интенсивностью. Интенсивность света прямо пропорциональна энергии испускаемой бета-частицы.



Рис. 1.12. Основной процесс сцинтилляции [46]

Все жидкие сцинтилляционные коктейли содержат как минимум органический растворитель и первичный и вторичный сцинтилляторы. Большая часть коктейлей содержат комбинацию поверхностно-активных веществ (ПАВ).

1. Растворитель – химическое вещество, которое преобразует кинетическую энергию β -излучения в энергию возбуждения и передает эту энергию молекуле сцинтиллятора. Растворитель должен быть способен передавать энергию без значительных потерь. Лучше всего подходят для этого те молекулы растворителя, которые имеют несвязанные пи (π) электроны и которые можно легко возбудить до более высоких энергий без потери энергии. Типичными молекулами, имеющими π -электронную структуру, являются ароматические молекулы. Помимо способности эффективно передавать энергию, растворитель должен обладать следующими характеристиками:

- легко растворять радиоактивный образец и молекулы сцинтиллятора;
- иметь низкое содержание природного ^{14}C ;
- иметь высокую прозрачность для фотонов света, испускаемого молекулой сцинтиллятора.

2. Первичный сцинтиллятор – химическое вещество, преобразующее энергию возбуждения в фотоны. Молекулы сцинтиллятора получают энергию от возбужденных молекул растворителя. Затем молекулы сцинтиллятора переходят в более высокое возбужденное энергетическое состояние с последующей излучательной релаксацией в основное состояние, сопровождающееся выделением энергии. Эта энергия высвобождается в виде

фотонов (световых вспышек), и регистрируется с помощью жидкостного сцинтилляционного спектрометра.

3. Вторичный сцинтиллятор (сместитель спектра) – химическое вещество, которое сдвигает длину волны света испускаемых фотонов в оптимальный диапазон длин волн фотоэлектронных умножителей (ФЭУ). Сегодня вторичный сцинтиллятор не является необходимым компонентом сцинтилляционного коктейля, поскольку современные ФЭУ чувствительны к длине волны первичного сцинтиллятора. В настоящее время вторичные сцинтилляторы в основном используются, когда в сцинтилляционный раствор помещается большое количество образца с цветовым гашением. Вторичный сцинтиллятор обеспечивает более эффективную передачу энергии бета-частицы для создания световых вспышек, которые прямо пропорциональны энергии бета-частицы.

4. ПАВ являются важным компонентом сцинтилляционного раствора на водной основе, поскольку он обеспечивает гомогенность раствора водного образца и органического сцинтиллятора.

Радиоактивные образцы и коктейль помещаются в небольшие прозрачные или полупрозрачные (часто стеклянные или пластиковые) вials, которые загружаются в прибор, известный как жидкостный сцинтилляционный спектрометр. Многие счетчики имеют два ФЭУ, соединенные по схеме совпадений (рис. 1.13). Схема совпадения гарантирует регистрацию световых импульсов, которые достигают обоих фотоумножителей, тогда как паразитные импульсы (например, из-за шума линии), воздействующие только на один из ФЭУ, игнорируются.

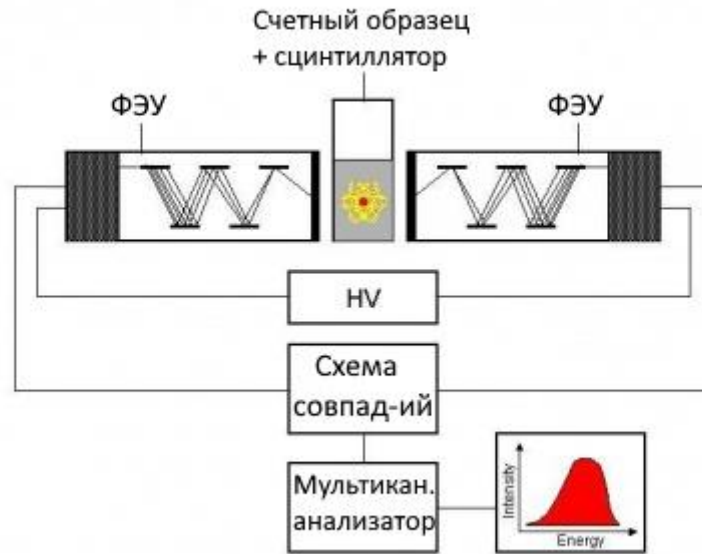


Рис. 1.13. Схема жидкостного сцинтиляционного счетчика [44]

Для правильного преобразования числа импульсов в активность необходимо принять во внимание эффективность счета ввиду значительных эффектов гашения.

Гашение – ряд эффектов, препятствующих прямому измерению активности. Гашение происходит при нарушении передачи энергии между радиоактивным изотопом и сцинтиляционной смесью. На практике эффекты гашения приводят к уменьшению амплитуды и количества импульсов, зарегистрированных счетчиком, что выражается в смещении энергетического спектра в область низких энергий и уменьшении скорости счета импульсов. Существует несколько типов гашения, но два из них наиболее влияют на измерения: химическое и цветное. Как показано на рис. 1.12, химическое гашение нарушает передачу энергии между растворителем и сцинтилятором, в то время как гашение цвета влияет на передачу энергии между сцинтилятором и ФЭУ за счет ослабления производимого света в образце.

Физическое гашение – это ослабление вспышек за счет различных физических явлений, таких как рассеяние света на взвешенных частицах в растворе или выпадение измеряемого вещества в осадок. Правильная гомогенизация раствора предотвратит физическое гашение.

Химическое гашение происходит за счет присутствия сильных окислителей (галогенов) в пробе, которые обладают способностью притягивать электроны извне в свою электронную оболочку. Это приводит к тому, что избыточная энергия возбужденных электронов сцинтиллятора тратится на химические процессы, а не на излучение световых вспышек.

Цветовое гашение света происходит за счет поглощения света красителями или мутностью. Гашение цвета препятствует передаче предварительно сформированных фотонов от первичного сцинтиллятора к вторичному и от вторичного сцинтиллятора к фотокатоду. Как следствие, сигнал, обнаруживаемый фотоэлектронным умножителем, не будет отражать общее количество действительно испускаемого света. Также к цветовому гашению относится хемилюминесценция, которая возникает в щелочных средах и в растворах с присутствием радикалов кислорода (гидроксид аммония, кислоты, перекиси, органические материалы).

Чтобы определить абсолютную активность образца, выраженную в Бк (распадов в секунду), необходимо сначала измерить уровень гашения образцов. Для определения эффективности счета могут использоваться различные методы. Эффективность счета представляет собой соотношение количества событий, подсчитанных прибором (выраженных в СРМ: количество импульсов в минуту или CPS: количество импульсов в секунду), и реального количества событий распада.

Увеличение гашения снизит эффективность счета: меньшее количество фотонов попадет в детектор, и количество отсчетов будет меньше числа радиоактивных событий.

Эффекты гашения можно снизить, улучшив подготовку образца и выбрав правильные настройки прибора (т. е., выбор правильных энергетических окон и оптимизация окна счета).

Современные жидкостные сцинтилляционные радиометры-спектрометры оборудованы устройствами автоматического определения уровня гашения анализируемого образца, смешанного со сцинтиллятором. У

каждого производителя приборов реализована своя методика коррекции гашения.

Ускорительная масс-спектрометрия

На протяжении десятилетий, после того как Либби провел первые эксперименты по радиоуглеродному датированию, единственным способом измерить содержание ^{14}C в образце было детектирование радиоактивного распада отдельных атомов углерода. В этом подходе измеряется активность образца в виде числа актов распада на единицу массы за период времени. В конце 1970-х гг. стал доступен альтернативный подход: прямой подсчет количества атомов ^{14}C и ^{12}C в образце с помощью УМС [47–49]. Данный высокочувствительный метод подсчета атомов является расширением традиционной масс-спектрометрии, но вместо ускорения ионов до энергий кэВ ионы ускоряются до энергий МэВ с помощью электростатического ускорителя. Из-за высокой энергии помехи от соседних изотопов и атомных и молекулярных изобар подавляются. Результат – тысячекратное увеличение чувствительности при измерении концентрации изотопов по сравнению с методом ЖСС, используемым для высокоактивных образцов. УМС рассчитывает соотношение $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ напрямую, а не активность образца. На сегодняшний день УМС – наиболее чувствительный метод для измерений радиоуглерода. В дополнение к этому УМС имеет еще два существенных преимущества по сравнению с другими методами измерения ^{14}C : небольшое количество образца (единицы миллиграмм) и меньшее время измерения.

На рис. 1.14 представлена схема ускорительного масс-спектрометра, который был создан в 2011 г. и запущен Институтом ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН в Новосибирске [50].

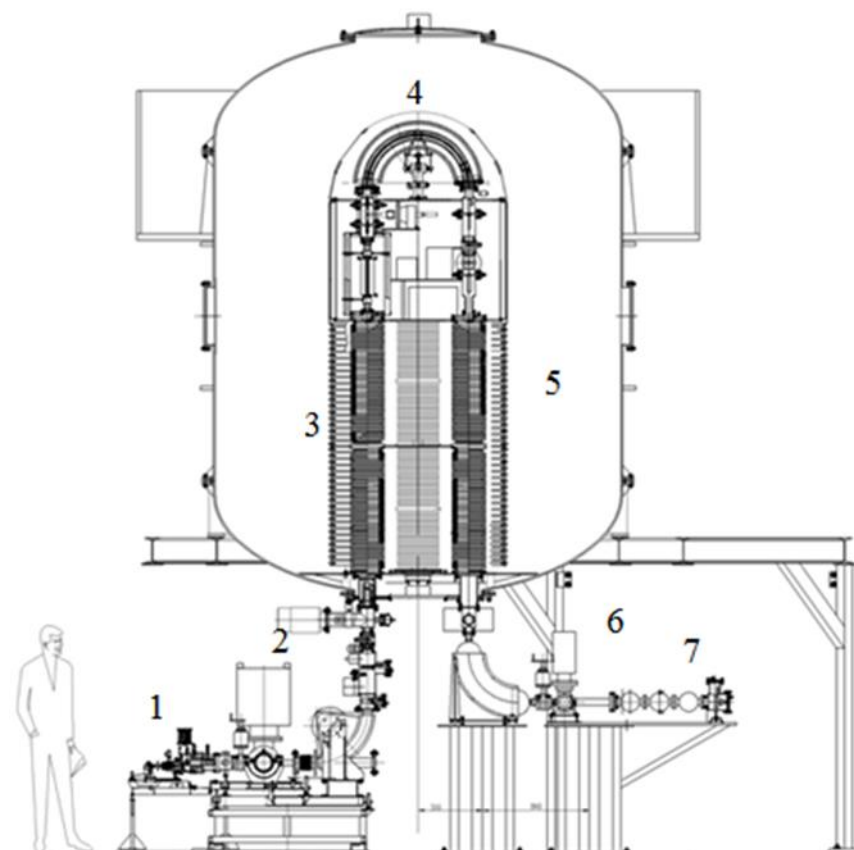


Рис. 1.14. Схема ускорительного масс-спектрометра в ИЯФ СО РАН: 1 – ионный источник; 2 – поворотный магнит; 3 – первая ускорительная трубка; 4 – мишень из паров магния; 5 – вторая ускорительная трубка; 6 – фильтр магнитным полем; 7 – тонкопленочный времяпролетный детектор [44].

Проведение радиоуглеродного анализа методом УМС состоит из следующих этапов:

1. Генерация ионного пучка. Графитизированные образцы (23 шт.) помещаются в барабан на расстоянии 7 мм друг от друга. Маленький стальной контейнер с жидким цезием нагревается до 600 °С, далее пары цезия попадают на танталовый ионизатор, нагретый до 1000 °С, и, ускоряясь напряжением 8 кВ, попадают на исследуемый образец. Таким образом генерируется отрицательный ионный пучок, состоящий из $^{12}\text{CH}_2^-$, $^{13}\text{CH}^-$, $^{14}\text{C}^-$, с энергией на выходе из ионного источника 25 кВ. Отрицательное зарядовое состояние первоначального пучка позволяет избавиться от ионов $^{14}\text{N}^-$, которые являются крайне нестабильными.

2. Ионный пучок фокусируется и ускоряется магнитным полем, попадая в первую ускорительную трубку, поворачиваясь на 90° , и, следуя к высоковольтному терминалу, напряжение которого составляет 1 МВ, попадает в мишень на парах магния.

3. Перезарядка ионов. На мишени на парах магния происходит перезарядка ионов до зарядового состояния 3^+ . Полученный пучок, состоящий из частиц $^{12}\text{C}^{3+}$, $^{13}\text{C}^{3+}$, $^{14}\text{C}^{3+}$, поворачивается на 180° и попадает во вторую ускорительную трубку. Селекция частиц происходит по их массе и заряду.

4. Регистрация ионов. Для регистрации ионов в УМС СО РАН установлен тонкопленочный времяпролетный детектор, состоящий из электростатического и циклоидального датчиков. В датчике установлена пленка, пролетая через которую, ионы вызывают эмиссию электронов. Далее электроны попадают на микроканальную пластину, где происходит их умножение. В это время проводится измерение времени пролета с интервалом 0,45 нс между датчиками.

Конечным результатом анализа является масс-спектр ионов, представляющий собой зависимость отношения концентраций изотопов $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ от массы иона [51].

Выводы

Углерод-14 – это низкоэнергетический бета-излучающий радионуклид, который образуется в процессе работы ядерного реактора любого типа. Выполненный анализ базы данных выбросов радионуклидов европейскими АЭС продемонстрировал, что наибольший удельный показатель выброса имеют газоохлаждаемые реакторы: AGR и GCR – 0,415 и 0,163 ГБк/(ГВт·ч), соответственно, наименьший – FBR – 0,014 ГБк/(ГВт·ч) и PWR – 0,024 ГБк/(ГВт·ч).

Радиоуглерод является одним из основных дозообразующих радионуклидов в выбросах АЭС России и Европы с реакторными установками любого типа. Обязательный мониторинг ^{14}C в выбросах АЭС в нашей стране введен с 2016 года. В настоящее время контроль осуществляется в два этапа: отбор проб газообразного ^{14}C с помощью абсорбента (чаще всего это раствор NaOH); измерение проб методом жидкостной сцинтилляционной спектрометрии. Данный метод обычно используют для проб с высокой активностью ^{14}C . В нашем случае для измерения активности ^{14}C на уровне фона целесообразно использовать метод ускорительной масс-спектрометрии, который позволяет напрямую подсчитывать число атомов радиоуглерода в образце, а не регистрировать отдельные акты бета-распада.

В выбросах предприятий атомной отрасли ^{14}C может находиться в виде $^{14}\text{CO}_2$, ^{14}CO и органических соединений ^{14}C . Следовательно, важно производить отбор всех газообразных соединений радиоуглерода для адекватной оценки эффективной дозы на население.

ГЛАВА 2. РАЗРАБОТКА ПРОБООТБОРНОГО СТЕНДА ^{14}C

Важность метрологически правильного отбора проб газообразного радиоуглерода обусловлена корректной оценкой эффективных доз на население и персонал. В выбросах предприятия атомной отрасли он может находиться в виде $^{14}\text{CO}_2$, ^{14}CO и C_nH_m . Если $^{14}\text{CO}_2$ относится к легкосорбируемым соединениям, то органический радиоуглерод и ^{14}CO необходимо сначала окислить с помощью каталитической установки до $^{14}\text{CO}_2$ и только потом улавливать с помощью абсорбента.

В России с 2018 г. на ПО «Маяк» осуществляется серийное производство стационарных пробоотборных стендов трития и углерода-14 УОТ-2 [52]. Применение узлов каталитического окисления в данной установке позволяет выполнять отбор ^{14}C в том числе в органических формах. Установка представляет собой металлический шкаф размерами 650 x 650 x 2200 мм и весом около 250 кг.

Зачастую интерес представляет не только суммарный выброс ^{14}C предприятием, но и количество образующегося радиоуглерода на отдельных узлах технологической цепочки (обращение с изотопной продукцией, эксплуатация ядерного реактора, манипуляции с ОЯТ и др.). Тогда пробоотборное устройство должно обладать высокой степенью мобильности. С этой целью был разработан переносной пробоотборный стенд (рис. 2.1).

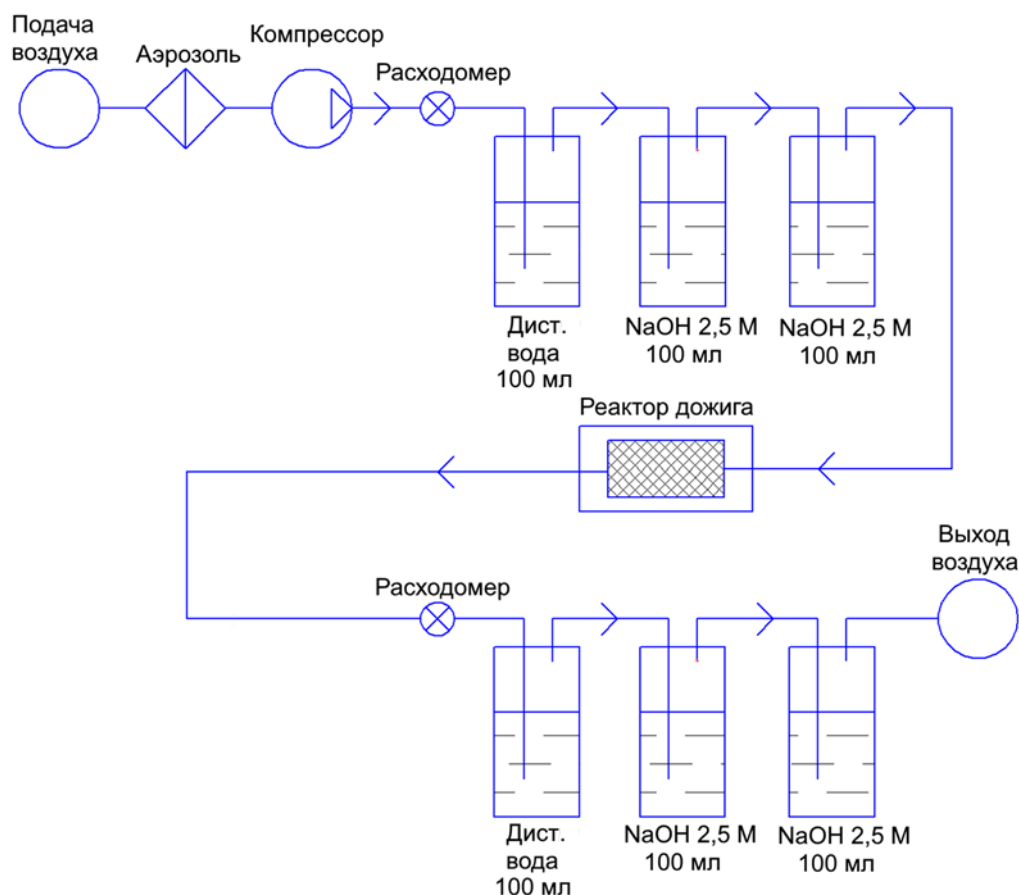


Рис. 2.1. Схема пробоотборного стенда

2.1. Описание стенда

Стенд подключается к штатной вентиляционной системе предприятия. На входе установлен аэрозольный фильтр, чтобы избежать вклада других бета-излучающих радионуклидов. Расход воздуха в системе составляет 0,4–0,6 л/мин. Первый барботер, заполненный 100 мл дистиллированной воды, выполняет отбор трития в водной форме. Каждый из следующих 2 барботеров с 2,5 М раствором 100 мл NaOH по реакции $\text{CO}_2 + \text{NaOH} \rightarrow \text{NaHCO}_3$ улавливает $^{14}\text{CO}_2$ с эффективностью 90 %. Далее ГВС поступает в каталитическую установку (рис 2.2). Через центральное отверстие из медного змеевика она поступает в слой предварительного нагрева, состоящий из кварцевого песка (1–2 мм). Далее уже нагретый газ поступает на промышленный высокотемпературный алюмооксидный катализатор $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ (550 °C) [53], где окисляется основная часть реагентов. Над слоем

промышленного катализатора находится макропористый оксид алюминия для лучшей передачи тепла от стенок каталитической установки к газу. Далее в направлении реагентов следует катализатор $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ для доокисления реагентов в умеренной температурной зоне (250–400 °С). Затем газ поступает в макропористый кислотный катализатор $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ для следующей стадии дожигания. Конечный выходной слой состоит из катализатора $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ для доокисления следовых количеств CO и H_2 в низкотемпературной области (100–250 °С) [54]. Откуда через смещенный относительно центра выход (обозначен синей стрелкой) газ выходит из установки в медный теплообменный змеевик. Выходная ГВС затем поступает на аналогичную систему барботеров, таким образом улавливаются все химические формы газообразного ^{14}C .

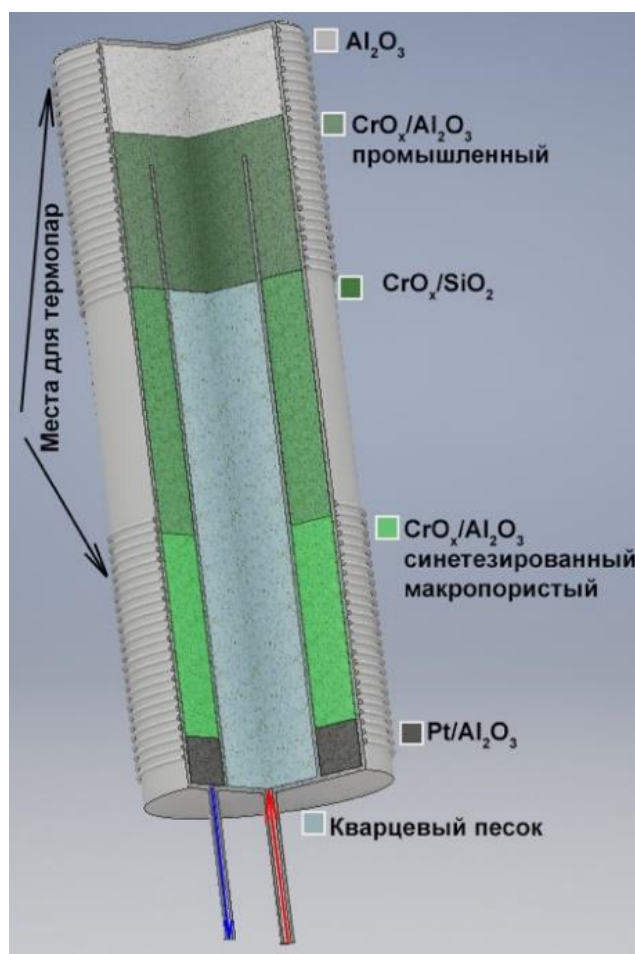


Рис. 2.2. Схема каталитической установки

Для регулирования нагрева каталитической установки предусмотрены две спиральные зоны нагрева из обмотки из изолированного нихромового провода диаметром 0,5 мм. Каждая зона имеет сопротивление 86 Ом и рассчитана на мощность 300 Вт. Контроль температуры осуществляется автоматически с помощью термодатчиков, установленных в зонах наиболее высоких температур реактора. Внешний вид пробоотборной установки и каталитического стенда представлен на рис. 2.3.

Валидация каталитической установки проводилась в Институте катализа им. Г.К. Борескова СО РАН. Известный состав полимеров сжигался в присутствии катализатора при температуре 600–650 °С. Результаты масс-спектрометрического анализа продуктов горения показали, что эффективность окисления углеродсодержащих соединений для данного катализатора составляет более 99,9 %.



Рис. 2.3. Внешний вид: а – пробоотборного стенда, б – каталитической установки

2.2. Отбор проб газообразного ^{14}C с помощью разработанного стенда

С помощью разработанного стенда был выполнен отбор газообразного ^{14}C в выбросах различных объектов использования атомной энергии: АО «Институт реакторных материалов» (ИРМ) г. Заречный, Свердловская область, АО «Научно-исследовательский физико-химический институт (НИФХИ) им. Л. Я. Карпова», г. Обнинск, Калужская область.

АО «ИРМ»

В АО «ИРМ» эксплуатируется исследовательский водо-водяной реактор бассейного типа ИВВ-2М. В качестве замедлителя и теплоносителя используется легкая вода. Номинальная тепловая мощность реактора 15 МВт. Бассейн реактора расположен в бетонном массиве, в баке из нержавеющей стали [55].

ИВВ-2М эксплуатируется для исследований в следующих областях [55]:

- физика твердого тела и ядерная физика;
- нейтронная физика;
- конструкционные материалы и материалы биологической защиты;
- действие ионизирующих излучений на приборы, датчики,

полупроводниковые материалы и оборудование.

Кроме этого, в АО «ИРМ» реализовано производство различной радиоизотопной продукции: ^{14}C , ^{131}Cs , ^{177}Lu , ^{192}Ir .

Штатная эксплуатация ядерной реакторной установки неизбежно приводит к образованию различных радионуклидов, в том числе ^{14}C , которые впоследствии попадают в окружающую среду с атмосферными выбросами из вентиляционной трубы. Источниками образования углерода-14 в АО «ИРМ» являются:

1. Взаимодействие тепловых нейтронов с азотом-14, присутствующим в теплоносителе и замедлителе, а также в конструкционных материалах ядерного реактора: $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$.

2. Взаимодействие тепловых нейтронов и кислорода-18, присутствующего в теплоносителе и замедлителе, а также конструкционных материалах ядерного реактора: $^{18}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$.

3. Процесс обращения с изотопной продукцией ^{14}C , наработка которого осуществляется в активной зоне реактора.

4. Обращение с отработавшим ядерным топливом.

5. Тройное деление ядер топлива.

В период с ноября 2021 г. по март 2022 г. с помощью разработанного стенда был исследован состав выбросов ^{14}C из вентиляционной трубы АО «ИРМ». Всего было отобрано 8 проб (табл. 2.1) с различными температурными режимами окислительной установки: 400, 550, 700 °С. Результаты измерения объемной активности (ОА) проб представлены на рис. 2.4.

Таблица 2.1. Данные по отбору проб ^{14}C в АО «ИРМ»

Проба №	Температура каталитической установки, °С	Доля $^{14}\text{CO}_2$	Доля ^{14}CO , $^{14}\text{C}_{\text{орг}}$
1	400	0,59	0,41
2	400	0,70	0,30
3	550	0,69	0,31
4	550	0,62	0,38
5	550	0,21	0,79
6	700	0,62	0,38
7	700	0,16	0,84
8	700	0,40	0,60

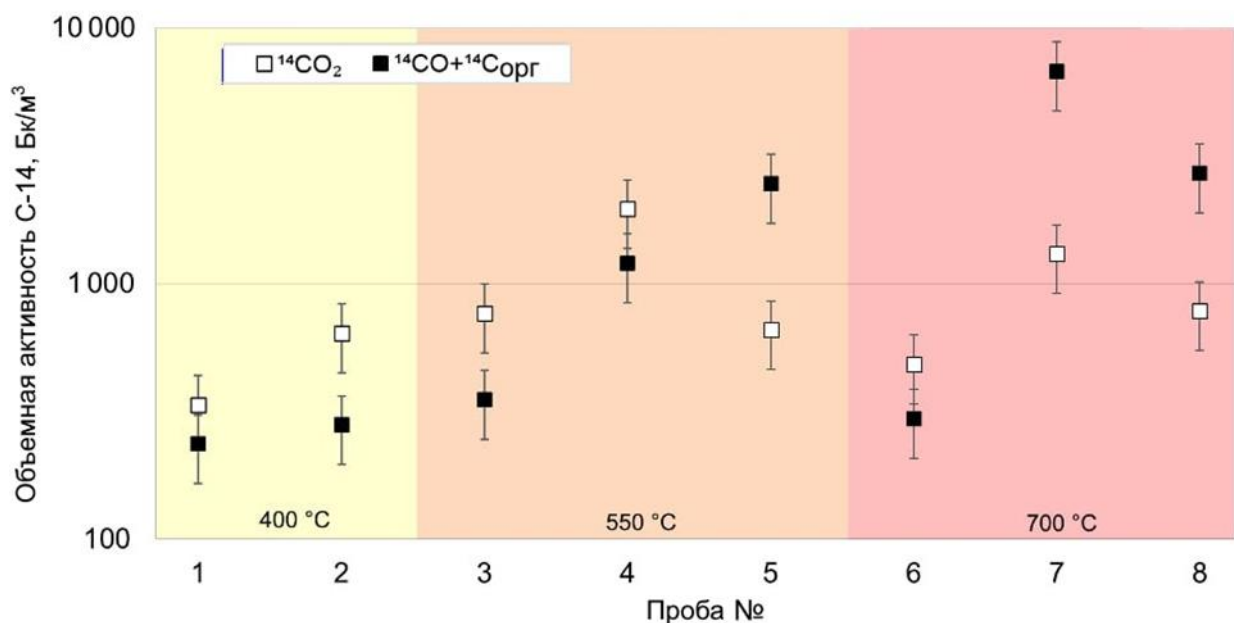


Рисунок 2.4 – Результаты измерения ОА ¹⁴С в выбросах АО «ИРМ»

Для температуры каталитической установки 400 °С суммарная ОА ¹⁴С находится в диапазоне 0,6–0,9 кБк/м³, 550 °С – 1,1–3,2 кБк/м³, 700 °С – 0,8–8,0 кБк/м³.

Превышение ОА органической фракции ¹⁴С и ¹⁴СО над ¹⁴СО₂ наблюдается в трех пробах из восьми. В остальных пробах органические соединения ¹⁴С и ¹⁴СО также вносят существенный вклад в ОА. Минимальная доля органического ¹⁴С за время эксперимента составила 30 %, максимальная – 84 %. В среднем с ростом температуры каталитической установки наблюдается увеличение регистрируемого значения ОА органической формы ¹⁴С. Различие в ОА ¹⁴С при одной и той же температуре каталитической установки может быть связано с разными режимами работы реактора, а также с разным составом активной зоны.

АО «НИФХИ им. Л.Я. Карпова»

В феврале 2023 г. отбор проб ¹⁴С с помощью разработанного стенда проводился в АО «НИФХИ им. Л. Я. Карпова». На данном предприятии эксплуатируется исследовательский водо-водяной ядерный реактор ВВР-ц, аналогичный ИВВ-2М. Таким образом, основным источником образования ¹⁴С

является ядерный реактор. Возможны следующие механизмы образования радиоуглерода:

1. Взаимодействие тепловых нейтронов с азотом-14, присутствующим в теплоносителе и замедлителе, а также в конструкционных материалах ядерного реактора: $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$.

2. Взаимодействие тепловых нейтронов и кислорода-18, присутствующего в теплоносителе и замедлителе, а также конструкционных материалах ядерного реактора: $^{18}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$.

3. Тройное деление ядер топлива.

Результаты измерения неорганической и органической фракции ^{14}C в выбросах АО «НИФХИ им. Л.Я. Карпова» представлены в табл. 2.2. Температура каталитической установки составляла 550 °С.

Таблица 2.2. Результаты измерения ОА ^{14}C в выбросах АО «НИФХИ им. Л. Я. Карпова»

Проба №	ОА $^{14}\text{C}_{\text{неорг}}$, Бк/м ³	ОА $^{14}\text{C}_{\text{орг}}$, Бк/м ³	Примечание
1	27 ± 7	56 ± 18	Штатная работа
2	< МДА	< МДА	Останов реактора
3	< МДА	< МДА	
4	16 ± 5	8 ± 3	Штатная работа
5	13 ± 4	11 ± 4	Штатная работа
6	15 ± 5	11 ± 4	Штатная работа
7	16 ± 5	12 ± 4	Штатная работа

Как видно из табл. 2.2, вклад органической фракции в ОА ^{14}C составляет от 33 до 68 %. При этом во время останова реактора ОА радиоуглерода меньше МДА. Наибольшая ОА наблюдается в конце реакторной кампании.

Выводы

Разработанный мобильный пробоотборный стенд позволяет производить отдельный одновременный отбор газообразных органических и неорганических соединений ^{14}C в выбросах предприятий атомной отрасли. Регулировка температурного режима каталитической установки обеспечила отбор всех органических соединений радиоуглерода. Результаты измерения ОА в выбросах рассмотренных предприятий показали, что органические соединения ^{14}C вносят значительный вклад в суммарную активность выброса. Неучет органических соединений газообразного ^{14}C может привести к неадекватной оценке годовых эффективных доз на население и, как следствие, заниженным нормативам предельно допустимых выбросов радиоуглерода. Различия в объемной активности ^{14}C данных предприятий можно объяснить дополнительным источником образования радиоуглерода в АО «ИРМ» – обращение с изотопной продукцией.

Представленные в данной главе результаты являются обоснованием **первого защищаемого положения:**

Разработанный пробоотборный стенд обеспечивает отдельный отбор газообразного ^{14}C в органической и неорганической формах. Доля регистрируемой органической фракции ^{14}C в выбросах исследовательского ядерного реактора составляет от 30 до 84 %.

ГЛАВА 3. РАЗРАБОТКА МЕТОДА РЕТРОСПЕКТИВНОЙ ОЦЕНКИ ВЫБРОСА ^{14}C

Обязательный мониторинг активности выброса ^{14}C на АЭС России появился менее 10 лет назад. Данные до этого периода отсутствуют, либо представлены за короткий промежуток измерений [24]. В работе [56] представлены данные только об усредненных выбросах ^{14}C различными советскими и российскими ядерными реакторными установками. Однако выполнение различных реакторных испытаний, ремонтных работ, выгрузки топлива, работ с графитовой кладкой (на РБМК) могли привести к резкому увеличению выброса ^{14}C . В связи с этим особый интерес представляет возможность оценки величины годового выброса радиоуглерода от прошедшей деятельности ядерных реакторов, в том числе выведенных из эксплуатации. В данной главе описана разработка метода ретроспективной оценки выброса ^{14}C ядерными реакторами различного типа.

3.1. Описание метода

Метод основан на УМС-анализе ^{14}C в годичных кольцах деревьев, растущих в непосредственной близости от источника выброса радиоуглерода. Углерод поступает в деревья в основном за счет поглощения атмосферного CO_2 посредством фотосинтеза. Фактическое соотношение изотопов радиоуглерода в окружающем воздухе сохраняется в их органических веществах [57]. В отличие от некоторых соединений древесины (лигнин, смолы, воски и т. д.), целлюлоза не мигрирует в тканях дерева после формирования [58, 59]. Таким образом, изменения ОА атмосферного ^{14}C сохраняются в целлюлозе годичных колец деревьев. Техногенный вклад в ^{14}C наблюдался при анализе годичных колец в районе АЭС «Пакш» [60], Игналинской АЭС [61], АЭС «Барсебек» [62]. В работе [61] содержание ^{14}C в кольцах деревьев коррелирует с годовой выработкой электроэнергии и количеством замененных топливных каналов на реакторе типа РБМК.

Ретроспективная оценка выброса ^{14}C предполагает последовательное решение следующих задач:

1. Выбор источника поступления радиоуглерода в окружающую среду. Как правило, он представляет из себя одну или несколько вентиляционных труб объекта использования атомной энергии, в процессе штатной работы которого образуется ^{14}C .

2. Расчет метеорологического фактора разбавления (ФР), определяющего отношение среднегодовой объемной активности в приземном слое воздуха к среднегодовой мощности выброса в атмосферу. Расчет выполняется согласно методике [63] с использованием многолетних метеорологических данных с ближайшей к источнику выброса метеостанции.

3. Определение критического участка местности – с наибольшим содержанием ^{14}C в объектах окружающей среды с учетом всех путей поступления. Этому участку соответствует максимальное значение ФР.

4. Отбор проб древесных кернов с критического участка с помощью бурава Пресслера (рис. 3.1).



Рисунок 3.1 – Бурав Пресслера

5. Разделение древесных кернов на годовичные кольца. Объединение годовичных колец одного возраста, но с разных особей деревьев в одну пробу, соответствующую определенному году.

6. Пробоподготовка образцов, в процессе которой из годовичных колец выделяется целлюлоза. Сжигание целлюлозы и превращение ее в графитоподобный углерод. Получение мишеней для УМС.

7. Исследование образцов с помощью УМС.

8. Интерпретация полученных данных.

3.2. Белоярская АЭС, АО «ИРМ» и Курская АЭС как источники выброса ^{14}C

Источник образования ^{14}C на Белоярской АЭС – ядерные энергетические установки: АМБ-100, АМБ-200, БН-600. Энергоблоки с водографитовыми канальными реакторами АМБ-100 и АМБ-200 эксплуатировались до выработки ресурса – с 1964 по 1981 год и с 1967 по 1989 г. соответственно. За это время работы энергоблок № 1 произвел 8,73 млрд кВт·ч электроэнергии, энергоблок № 2 – 22,24 млрд кВт·ч. Также реакторы снабжали теплом город Заречный. Реакторы АМБ-100 и АМБ-200 (Атом Мирный Большой) стали развитием реактора АМ-1 первой в мире Обнинской атомной электростанции. Как и АМ-1, это были кипящие канальные реакторы с графитовым замедлителем и охлаждением водой. Для улучшения энергетических параметров осуществлялся перегрев пара. АМБ-200 отличался одноконтурной тепловой схемой, что позволило увеличить его мощность. Эксплуатация АМБ-100 и АМБ-200 дала возможность отработать технологию, благодаря которой были созданы более мощные энергоблоки с канальными реакторами – РБМК.

Источники выброса ^{14}C , расположенные на одной промышленной площадке – вентиляционные трубы АО «ИРМ» (ИВВ-2М), 2 трубы первой (АМБ-100, АМБ-200) и 1 труба второй очереди (БН-600) Белоярской АЭС. АМБ-100 эксплуатировался в 1964–1981 гг., АМБ-200 – в 1969–1989 гг. Пуск ИВВ-2М состоялся в 1966 г., однако в качестве сопоставимого источника ^{14}C он начал учитываться с 1995 г. – начала промышленной наработки радиоуглерода. Пуск БН-600 состоялся в 1980 г.

Курская АЭС представлена четырьмя реакторами РБМК-1000 электрической мощностью 1 000 МВт. Реакторы были запущены с 1976 по 1985 г. Основное количество ^{14}C образуется в графите реактора и охлаждающем его газе – около 80 %. В топливе примерно 7–8 %, в оболочках ТВЭЛов 9–10 %, в теплоносителе – менее 1 %. Основная реакция образования ^{14}C в

теплоносителе – $^{17}\text{O}(\text{n}, \alpha)^{14}\text{C}$ (97 %), в замедлителе – $^{14}\text{N}(\text{n}, \text{p})^{14}\text{C}$ (70–75 %), при этом около 50 % ^{14}C образуется на примеси азота в графите [24].

Текущий выброс ^{14}C в атмосферу осуществляется через две вентиляционные трубы высотой 150 м.

3.3 Расчет метеорологического фактора разбавления

Расчет метеорологического ФР осуществляется на основе следующих данных с ближайшей к источнику выброса ^{14}C метеостанции: среднегодовое и среднемесячные значения скорости ветра за многолетний период наблюдений; средняя за многолетний период годовая и месячная повторяемость направлений ветра и штиля на высоте 10 м по 16 румбам (роза ветров) и соответствующие средние скорости ветра; среднегодовое и среднемесячные значения общей и нижней облачности по десятибалльной системе за многолетний период наблюдений; среднегодовое и среднемесячные значения метеорологической дальности видимости за многолетний период наблюдений; среднегодовое и среднемесячные значения атмосферных осадков за многолетний период наблюдений, тип атмосферных осадков; среднегодовое и среднемесячные значения температуры воздуха за многолетний период наблюдений; среднегодовое и среднемесячные значения влажности воздуха за многолетний период наблюдений.

В качестве опорной метеостанции для расчета ФР АО «ИРМ» и Белоярской АЭС была выбрана метеостанция Верхнее Дуброво, расположенная в 18 км к юго-западу от г. Заречного. Архив включал около 30 тыс. записей с июня 2006 г. по июль 2020 г. Для Курской АЭС использовали данные с метеостанции в г. Курске (около 40 км от г. Курчатова), архив включал около 50 тыс. записей с февраля 2005 г. по апрель 2022 г [64].

Расчет характеристик рассеяния примеси рекомендуется проводить с использованием распределений ветра по 16 румбам. В табл. 3.1 представлены такие распределения направления ветра для АО «ИРМ» и Белоярской АЭС, в табл. 3.2 – для Курской АЭС.

Таблица 3.1. Повторяемости направления ветра на высоте 10 м по месяцам на метеостанции п. Верхнее Дуброво, % [64]

Направление, румб	Месяц												Год
	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	XI	XII	
С	1,1	1,9	2,0	2,6	3,8	3,7	6,2	5,0	3,5	2,5	2,6	1,8	3,1
ССВ	1,1	2,7	1,1	2,2	3,1	3,0	5,3	4,2	3,2	2,7	2,8	1,5	2,7
СВ	2,3	2,7	1,7	3,1	4,9	4,0	8,0	5,0	2,9	1,8	2,8	1,5	3,4
ВСВ	1,9	2,5	2,0	2,1	3,1	3,5	6,2	2,3	2,5	1,3	1,3	1,2	2,5
В	4,4	6,1	5,1	3,5	5,9	4,7	5,4	3,7	3,7	4,1	3,5	3,1	4,4
ВЮВ	3,6	3,7	4,0	3,6	4,3	4,1	3,4	3,6	4,4	2,3	2,4	3,7	3,6
ЮВ	4,5	3,6	4,2	3,7	4,2	4,8	4,1	3,9	4,1	3,1	2,2	4,1	3,9
ЮЮВ	4,6	3,2	4,0	3,5	2,9	3,0	2,6	2,3	2,7	2,4	2,5	3,0	3,1
Ю	5,8	6,0	8,6	5,7	4,4	3,8	2,5	4,2	4,4	5,5	4,0	6,4	5,1
ЮЮЗ	7,1	4,9	7,0	7,6	5,6	5,6	3,4	5,3	6,1	6,5	7,0	8,4	6,2
ЮЗ	12,0	10,4	13,1	14,1	7,3	7,8	5,1	8,0	12,2	10,6	12,3	13,0	10,5
ЗЮЗ	13,3	12,1	12,5	11,1	7,7	7,8	4,7	7,1	7,9	12,1	12,0	14,8	10,3
З	21,2	19,5	17,1	15,1	12,1	11,0	9,8	11,3	10,5	13,8	20,5	22,1	15,3
ЗСЗ	6,0	10,3	8,6	11,4	13,1	12,0	9,8	10,5	12,4	14,5	12,6	6,5	10,6
СЗ	1,8	2,3	3,6	4,5	6,6	8,5	6,6	6,4	6,2	8,2	4,4	2,1	5,1
ССЗ	0,8	1,9	1,6	3,1	5,3	5,7	5,7	5,6	4,9	4,0	3,0	1,5	3,6
Штиль	1,1	1,9	2,0	2,6	3,8	3,7	6,2	5,0	3,5	2,5	2,6	1,8	3,1

Таблица 3.2. Повторяемости направления ветра на высоте 10 м по месяцам на метеостанции г. Курск, % [64]

Направление, румб	Месяц												Год
	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	XI	XII	
С	4,1	4,0	5,7	5,7	6,6	7,8	6,4	8,3	5,2	4,4	2,9	3,0	5,3
ССВ	3,8	2,5	4,0	4,6	6,2	6,4	5,5	6,1	4,5	4,1	2,4	1,9	4,3
СВ	4,5	5,5	3,5	6,3	7,8	8,5	9,1	7,5	6,6	6,1	2,9	2,8	5,9
ВСВ	4,3	5,7	4,5	5,3	6,0	7,3	6,1	6,2	5,7	5,1	4,0	3,1	5,3
В	6,1	7,4	7,2	6,0	8,1	8,4	6,2	6,1	7,3	6,2	7,2	7,6	7,0
ВЮВ	4,4	5,1	4,5	3,9	4,7	3,3	4,0	4,0	5,5	4,3	5,2	5,6	4,5
ЮВ	7,5	6,2	5,3	4,9	5,5	3,3	4,6	4,3	5,0	4,9	7,1	8,6	5,6
ЮЮВ	6,2	5,7	4,5	5,1	5,5	2,6	3,1	4,0	4,5	4,3	6,8	6,9	4,9
Ю	7,9	8,2	6,2	7,0	6,4	3,6	4,2	4,3	4,1	6,6	9,0	9,0	6,4
ЮЮЗ	6,0	6,8	5,8	5,8	4,8	3,3	3,1	3,1	2,8	6,1	6,4	7,7	5,2
ЮЗ	10,6	10,0	7,8	7,6	5,6	5,7	4,8	5,2	7,1	11,2	9,8	9,5	7,9
ЗЮЗ	8,3	6,8	7,7	6,4	4,6	4,6	6,0	4,6	6,0	7,0	8,0	7,0	6,4
З	10,1	9,1	9,6	8,2	6,8	6,7	8,2	6,9	8,7	8,1	9,4	10,8	8,5
ЗСЗ	5,8	5,4	7,0	6,1	5,6	7,7	7,2	6,1	8,1	6,3	6,4	6,8	6,5
СЗ	2,9	3,7	5,5	5,3	3,9	6,3	6,1	6,3	6,7	4,2	3,2	3,2	4,8
ССЗ	4,1	3,8	6,6	6,5	5,2	6,6	6,4	8,9	5,6	4,8	4,0	3,4	5,5
Штиль	3,4	4,3	4,7	5,6	6,5	8,2	9,0	8,1	6,8	6,6	5,4	3,1	6,0

На территории района расположения Курской АЭС в течение большей части года преобладают западные, юго-западные и восточные ветра. Ветра юго-западных и западных румбов преобладают осенью и зимой, ветра восточных румбов – летом. Количество дней со штилями составляет примерно 6 %, варьируя по сезонам от 3,6 % в среднем зимой до 8,42 % в среднем летом.

На территории района расположения Белоярской АЭС и АО «ИРМ» преобладают западные ветра.

Среднегодовая скорость ветра в районе расположения Курской АЭС составляет 3,1 м/с. В течение года преобладают ветра со скоростями 2–2,7 м/с. Для Белоярской АЭС и АО «ИРМ» в течение года средняя скорость ветра находится в диапазоне от 1,5 м/с в августе до 2,2 м/с в апреле, при этом среднегодовая скорость ветра составляет 1,8 м/с. В табл. 3.3 представлены данные о средних скоростях ветра по метеостанциям г. Курска и п. Верхнее Дуброво.

Таблица 3.3. Средние скорости ветра по месяцам и за год, по данным метеостанций, м/с [64]

Месяц	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Год
Курск	2,7	2,6	2,6	2,5	2,2	2,0	1,9	1,9	2,1	2,2	2,6	2,7	2,3
Верхнее Дуброво	1,8	1,8	2,1	2,2	1,9	1,7	1,6	1,5	1,7	1,9	2,0	1,9	1,8

Среднегодовая температура воздуха в районе Курской АЭС составляет +7,7 °С. Абсолютный минимум в рассматриваемый период составил –29,4 °С (февраль 2006 г.), абсолютный максимум составил +38 °С (август 2010 г.). Среднегодовая температура воздуха в районе Белоярской АЭС и АО «ИРМ» составляет +2,8 °С. Абсолютный минимум на метеостанции Верхнее Дуброво –36,3 °С был зафиксирован в январе 2014 г., максимум – в июле 2012 г. составил +36,5 °С. В табл. 3.4 представлены средние температуры по метеостанциям г. Курска и п. Верхнее Дуброво.

Таблица 3.4. Средние температуры по месяцам и за год, по данным метеостанций, °С [64]

Месяц	Курск	Верхнее Дуброво
1	-6,3	-13,6
2	-5,4	-12,1
3	-0,1	-4,1
4	+8,5	+4,3
5	+15,8	+11,8
6	+19,1	+16,2
7	+4,1	+18
8	+20,5	+16,5
9	+14,2	+10
10	+7,3	2,9
11	+1,3	-5,6
12	-2,9	-11,1
Год	+7,7	+2,8

Распределение количества осадков по месяцам и среднегодовое значение, по данным метеостанций представлено в табл. 3.5. Распределение относительной влажности воздуха по месяцам и среднегодовое значение, по данным метеостанций представлено в табл. 3.6.

Таблица 3.5. Количество осадков по месяцам и за год, по данным метеостанций, мм [64]

Месяц	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Год
Курск	54	40	44	39	55	65	65	46	48	49	45	56	608
Верхнее Дуброво	25	22	28	41	48	62	91	66	47	37	35	26	527

Таблица 3.6. Относительная влажность по месяцам и за год, по данным метеостанций, % [64]

Месяц	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	Год
Курск	86	82	73	60	59	62	63	59	67	76	85	89	72
Верхнее Дуброво	75	71	65	58	53	63	68	72	75	75	78	77	69

Устойчивость атмосферы определяется соотношением динамического и термического факторов. Существует целый ряд параметров, которые характеризуют состояние устойчивости разных слоев атмосферы. В качестве входной информации для классификации устойчивости атмосферы служат данные об облачности, видимости, высоте солнца, наличии/отсутствии снежного покрова и скорости ветра на высоте флюгера. Четыре первые величины характеризуют степень прогрева нижнего слоя атмосферы за счет солнечной радиации (термическую стратификацию), последняя характеризует степень динамического перемешивания. В расчетах используется семь категорий: А – очень сильная неустойчивость; В – умеренная неустойчивость; С – слабая неустойчивость; D – безразличное состояние; Е – слабая устойчивость; F – умеренная устойчивость; G – очень сильная устойчивость.

Определение категорий устойчивости атмосферы при наличии измерений на опорной метеорологической станции проведены расчетным путем по методу Пасквилла – Тернера с поправкой ИЭМ (Т-ИЭМ), методом, изложенным в методике [63]. Среднегодовое распределение категорий устойчивости, по данным метеостанции, показано в табл. 3.7.

Таблица 3.7. Годовое распределение категорий устойчивости, по данным метеостанций, % [64]

Категория устойчивости	А	В	С	Д	Е	Ф	Г
Курск	1,4	5,1	9,5	51,4	9,6	12,8	10,4
Верхнее Дуброво	2,6	8,0	17,9	25,7	10,3	25,7	9,8

Для характеристики совместной повторяемости значений определяющих параметров переноса используется параметр $\omega_{n,j,k}$, представляющий собой повторяемость событий, заключающихся в совместной реализации направления ветра n -м румбе φ_n , j -й категории устойчивости атмосферы p_j и k -й градации скорости ветра U_k по результатам 8-срочных наблюдений на метеостанции. При этом должно выполняться следующее условие нормировки: $\sum_{n=1}^N \sum_{j=1}^J \sum_{k=1}^K \omega_{n,j,k} = 1$, в котором суммирование проводится по всем направлениям ветра N , всем категориям устойчивости атмосферы J и всем диапазонам разбиения скоростей ветра K , включая штилевые условия.

Значения совместной повторяемости направления ветра n -м румбе φ_n , j -й категории устойчивости атмосферы p_j и k -й градации скорости ветра U_k по результатам 8-срочных наблюдений на метеостанциях г. Курска и п. Верхнее Дуброво представлены в Приложении В.

При проведении расчетов выбросов важную роль играет выбор модели атмосферной диффузии. На практике широкое применение получили Гауссовы модели. Разные модификации Гауссовой модели отличаются способами определения значений горизонтальной и вертикальной дисперсии. В настоящее время чаще всего используются формулы Бриггса для горизонтальной дисперсии примеси σ_y^2 и Смита – Хоскера для вертикальной

дисперсии σ_z^2 как функции расстояния от источника выброса и категорий устойчивости атмосферы по классификации Тернера (семь категорий).

Расчеты среднегодового метеорологического фактора разбавления $\bar{G}_n^r(x)$ и проинтегрированного по высоте фактора разбавления $\bar{G}_n^{z,r}(x)$ проводятся от условного источника, расположенного в геометрическом центре имеющихся источников.

Среднегодовой метеорологический фактор разбавления радионуклида r в приземном слое воздуха на расстоянии x от организованного источника выбросов в направлении ветра n -го румба в рамках Гауссовой модели рассеяния примеси в атмосфере рассчитывается по формуле:

$$\bar{G}_n^r(x) = \frac{2 \cdot N}{(2 \cdot \pi)^{3/2} \cdot x} \cdot \sum_j \sum_k \frac{\omega_{n,j,k}}{\sigma_{z,j}(x) \cdot U_{j,k}} \cdot \exp\left(-\frac{h_s^2}{2 \cdot \sigma_{z,j}^2(x)}\right), \quad (3.1)$$

где N , n – общее число и номер румба; индекс n указывает номер румба, откуда дует ветер, при этом примесь переносится от источника в противоположный румб; J , j – общее число и номер градации категории устойчивости атмосферы соответственно; K , k – общее число и номер градации модуля скорости ветра на высоте флюгера соответственно;

$\omega_{n,j,k}$ – повторяемость метеорологических условий, заключающаяся в совместной реализации направления ветра в румбе n при категории устойчивости j и градации скорости ветра k (приложение В к настоящему документу);

$\sigma_{z,j}(x)$ – дисперсия струи по вертикали на расстоянии x от источника выбросов для j -й категории устойчивости атмосферы, м; порядок расчета данной величины указан в методике [63];

$U_{j,k}$ – модуль скорости ветра на высоте выброса h_s при скорости ветра на высоте флюгера из градации k для j -й категории устойчивости атмосферы, м/с; порядок определения данной величины приведен в методике [63];

h_s – геометрическая высота трубы, из которой осуществляется выброс, м.

Значения величин $\sigma_{z,j}(x)$ и $U_{j,k}$ зависят от параметра шероховатости подстилающей поверхности Z_0 в районе расположения источника выбросов.

Расчет ФР позволил определить критический участок выброса – участок местности с наибольшим ожидаемым поступлением ^{14}C в растительность. На рис. 3.2 схематично представлено расположение источников выброса ^{14}C на промышленной площадке Белоярской АЭС и критического участка, расположенного на 1,3 км восточнее от геометрического центра источников выброса.

В районе метеостанции г. Курска преобладают западные, юго-западные и восточные ветра (табл. 3.1). Поскольку в восточном направлении от Курской АЭС находится Курчатовское водохранилище, на критическом участке местности будет отсутствовать древесная растительность. В связи с этим за критический был принят участок с наибольшим значением метеорологического ФР с произрастающей многолетней древесной растительностью. Участок находится на 2,7 км западнее геометрического центра источников выброса (рис. 3.3).

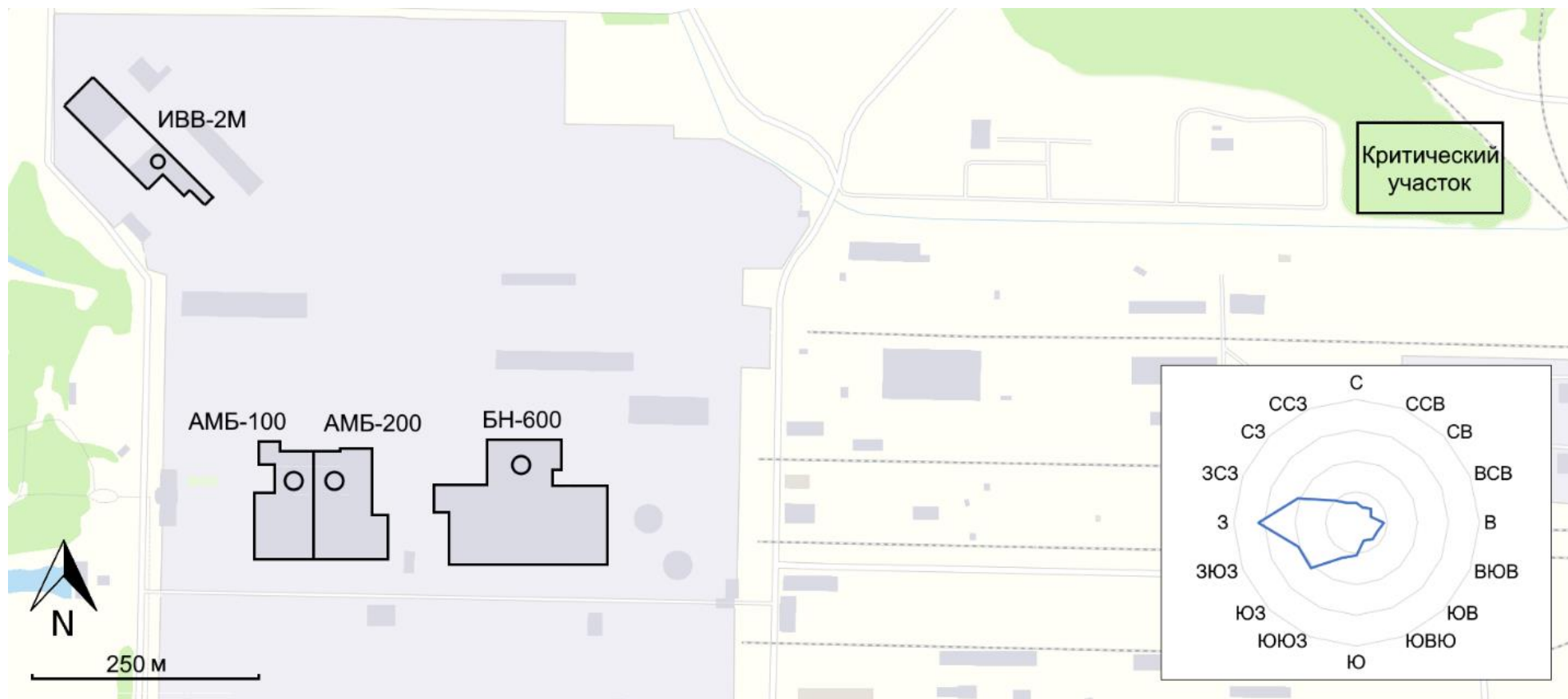


Рис. 3.2. Расположение источников выброса ^{14}C на промышленной площадке Белоярской АЭС и критического участка местности

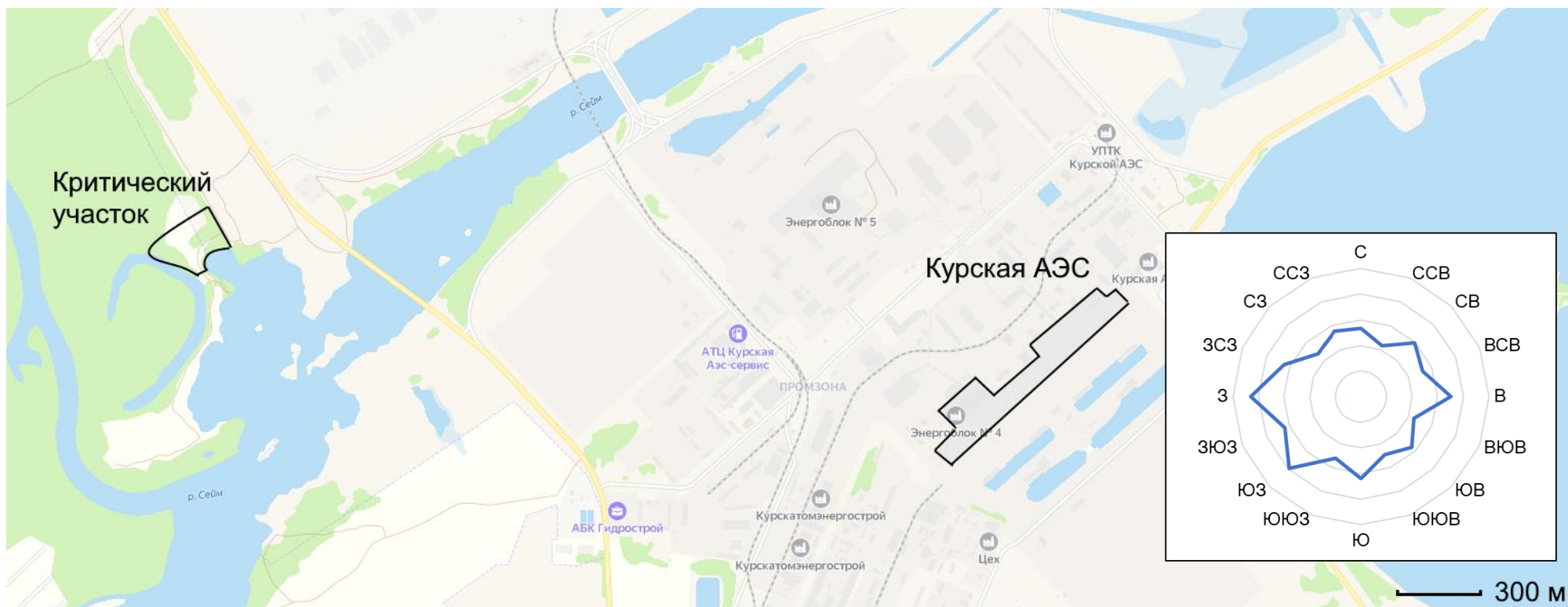


Рис. 3.3. Расположение источников выброса ^{14}C на промышленной площадке Курской АЭС и критического участка местности

3.4 Отбор и подготовка проб

Отбор кернов деревьев на территории критического участка осуществлялся с помощью бурава Пресслера на высоте примерно 130 см от поверхности почвы (рис. 3.4). Возраст деревьев варьировался от 40 до 70 лет. Полученные керны (рис. 3.5) были затем разделены на годовичные кольца. Кольца одного возраста с разных особей были объединены в одну пробу, соответствующую определенному году (рис. 3.6). Для анализа были выбраны 10–15 различных проб.

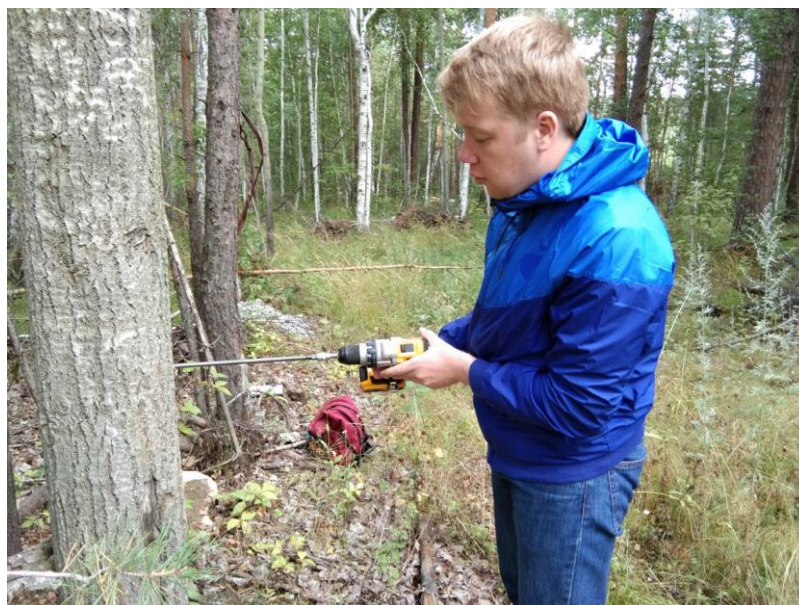


Рис. 3.4. Процесс отбора кернов деревьев



Рис. 3.5. Внешний вид кернов



Рис. 3.6. Объединенные в пробы одного года кольца деревьев

В качестве фоновых значений использовались данные об активности ^{14}C в годичных кольцах 113-летней сосны, выросшей в Академгородке г. Новосибирска. Это обусловлено тем, что г. Новосибирск находится на значительном расстоянии от действовавших и действующих объектов использования атомной энергии, т. е. не был подвержен воздействию антропогенных источников радиоуглерода, за исключением испытаний ядерного оружия. В 2009 г. удельная активность ^{14}C в наземных биологических компонентах в северном полушарии составляла 238 Бк/кг С, что близко к значениям до атмосферных ядерных испытаний – 227 Бк/кг С [65].

В ходе пробоподготовки из годичных колец химическим способом выделялась целлюлоза, которая затем подвергалась полному сжиганию и превращению в графитоподобный углерод на абсорбционно-каталитической установке (рис. 3.7), предназначенной для получения УМС-мишеней [66]. Далее из графита прессовались мишени (рис. 3.8). Полученные мишени устанавливались в барабан ускорительного масс-спектрометра (рис. 3.9), после чего проводились измерения концентрации ^{14}C .



Рис. 3.7. Установка для графитизации образца

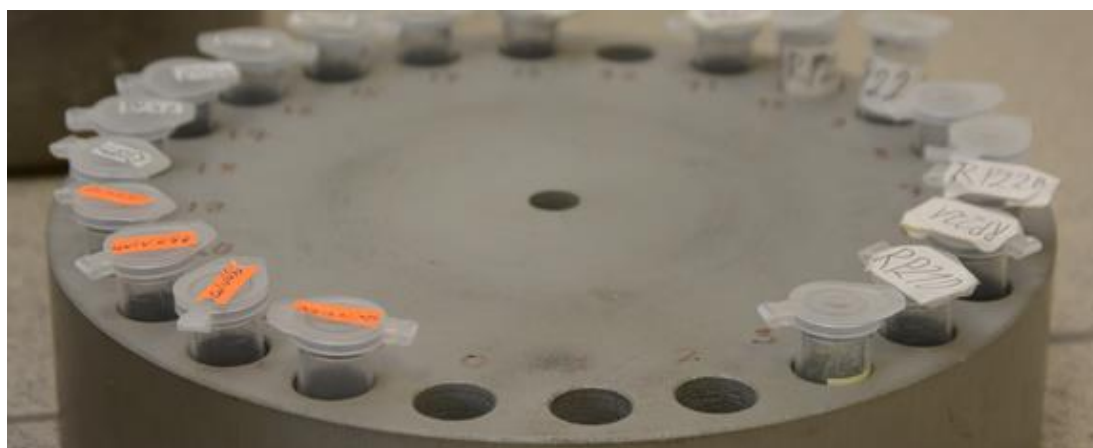


Рис. 3.8. Подготовка графитового порошка к прессовке



Рис. 3.9. Загрузка мишеней в барабан ускорительного масс-спектрометра

3.5 Результаты измерения проб методом ускорительной масс-спектрометрии

Измерения образцов древесины были выполнены с помощью ускорительного масс-спектрометра в Институте ядерной физики (ИЯФ) им. Г. И. Будкера СО РАН в Новосибирске (рис. 3.10). Принцип его работы описан в разделе 1.6 [50, 51].



Рис. 3.10. Внешний вид ускорительного масс-спектрометра в ИЯФ СО РАН

Белоярская АЭС и АО «ИРМ»

В табл. 3.8 и на рис. 3.11 представлены результаты измерения УА ^{14}C в годовых кольцах деревьев в районе расположения АО «ИРМ» и Белоярской АЭС. Во всех измеренных пробах виден техногенный вклад в УА ^{14}C в годовых кольцах деревьев. Этот вклад обусловлен эксплуатацией графитоводных ядерных реакторных установок АМБ-100 и АМБ-200, а также деятельностью АО «ИРМ» по наработке и обращению с изотопной продукцией радиоуглерода.

Таблица 3.8. Результаты измерения УА ^{14}C в годовых кольцах деревьев вблизи Белоярской АЭС и АО «ИРМ» [67]

Год	Удельная активность ^{14}C , Бк/кг С	
	Белоярская АЭС и АО «ИРМ»	Фон
1960	278,1 ± 7,1	287,1 ± 8,4
1962	321,2 ± 0,6	307,1 ± 12,5
1963	403,0 ± 4,3	387,5 ± 6,3
1964	415,6 ± 13,7	434,8 ± 7,1
1970	364,1 ± 10,9	337,1 ± 4,1
1980	343,6 ± 34,5	286,9 ± 7,0
1990	297,3 ± 24,6	261,1 ± 5,0
1993	281,0 ± 0,3	256,1 ± 3,0
1994	330,3 ± 7,4	254,9 ± 5,0
1995	392,6 ± 48,6	253,1 ± 4,1
2000	340,2 ± 6,9	242,0 ± 0,9
2005	346,2 ± 12,8	236,1 ± 2,0
2010	267,9 ± 8,0	232,9 ± 2,0
2015	267,2 ± 2,5	229,9 ± 0,9
2020	293,7 ± 2,5	227,0 ± 0,9

Как видно из табл. 3.8, наибольшая удельная активность наблюдалась в 1970 г. и 1995 г. – 343,6 ± 34,5 и 392,6 ± 48,6 Бк/кг соответственно.

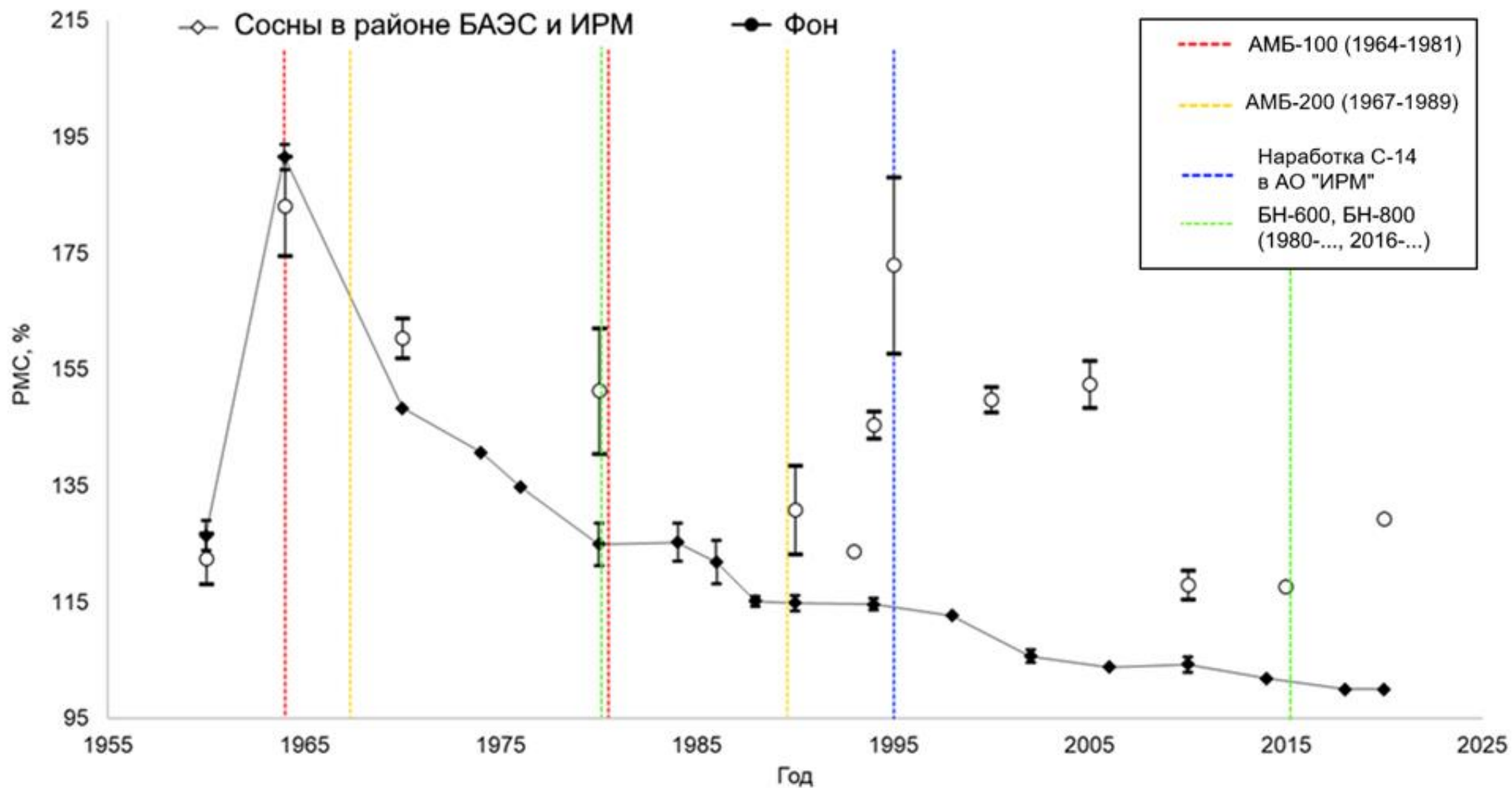


Рис. 3.11. Концентрация ^{14}C в годичных кольцах сосен, выросших на критическом участке выброса ИВВ-2М и реакторов АМБ-100 и АМБ-200

Курская АЭС

В табл. 3.9 и на рис. 3.12 представлены результаты измерения удельной активности ^{14}C в годовых кольцах деревьев в районе расположения Курской АЭС.

Таблица 3.9 – УА ^{14}C в годовых кольцах деревьев вблизи Курской АЭС

Год	Удельная активность ^{14}C , Бк/кг	
	Курская АЭС	Фон
1970	338,2 ± 10,5	337,1 ± 4,1
1976	330,7 ± 2,7	306,0 ± 3,0
1980	306,0 ± 1,5	287,2 ± 7,3
1984	292,1 ± 1,7	284,4 ± 6,4
1986	285,4 ± 1,9	276,7 ± 7,5
1988	281,4 ± 1,6	261,4 ± 4,1
1990	276,5 ± 1,5	260,7 ± 5,2
1994	265,2 ± 2,5	254,2 ± 5,1
1998	255,8 ± 1,7	249,5 ± 3,4
2002	255,1 ± 1,8	239,9 ± 4,8
2006	267,5 ± 1,7	234,2 ± 2,7
2010	244,4 ± 1,5	232,7 ± 2,1
2014	325,8 ± 13,1	231,1 ± 0,6
2018	310,4 ± 6,2	228,5 ± 0,8
2020	230,0 ± 1,7	227,0 ± 1,0

Как видно из табл. 3.9, наибольшая удельная активность наблюдается в 2014 г. и 2018 г. – 325,8 ± 13,1 и 310,4 ± 6,2 Бк/кг соответственно.

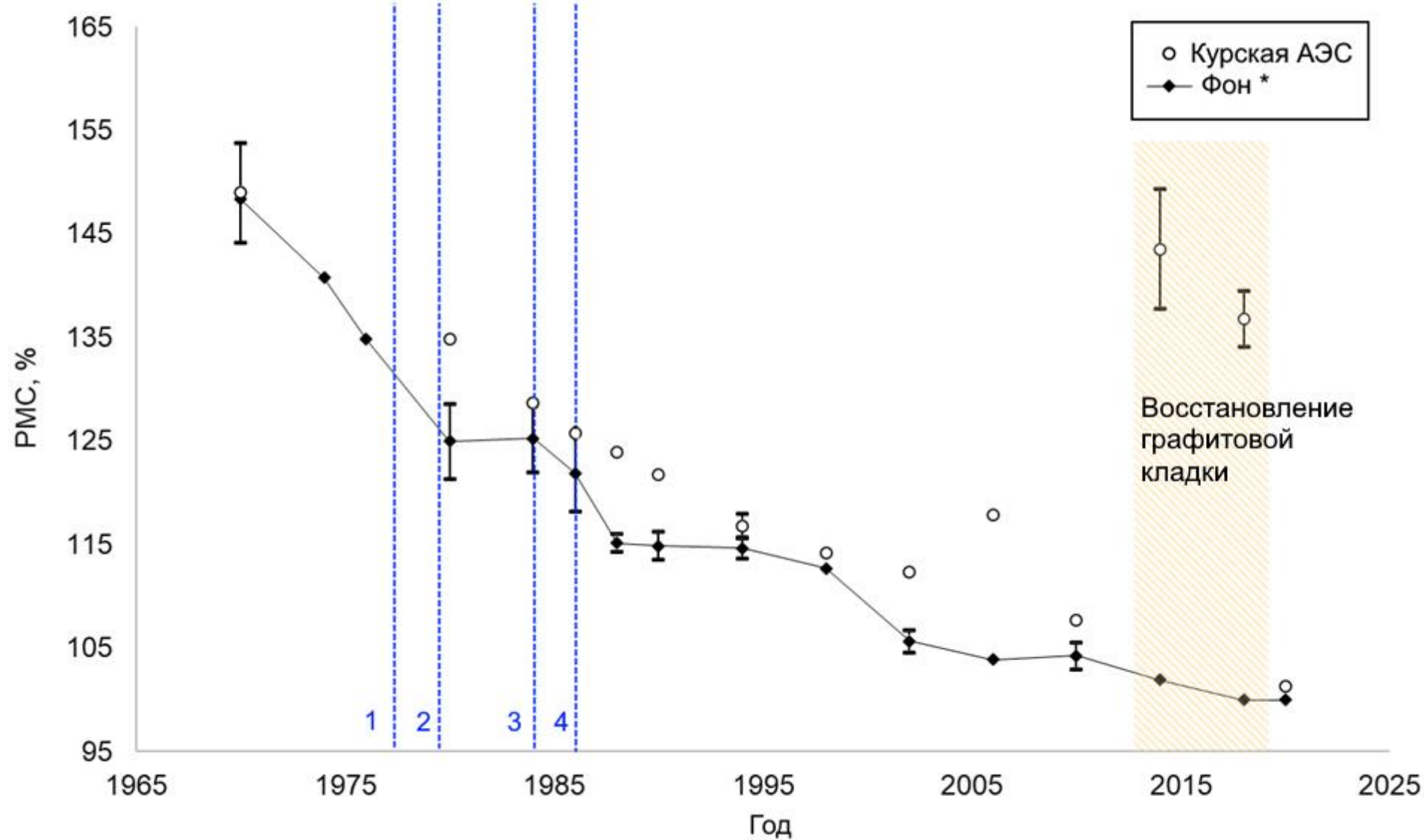


Рис. 3.12. Концентрация ^{14}C в годичных кольцах деревьев в районе расположения Курской АЭС. Синими пунктирными линиями обозначены года ввода в эксплуатацию энергоблоков 1–4.

Во всех измеренных образцах наблюдается техногенный вклад от выбросов Курской АЭС в объемную активность ^{14}C в атмосферном воздухе. Наиболее высокие концентрации ^{14}C наблюдаются в период восстановления графитовой кладки. Это подтверждает гипотезу, что основная часть образующегося ^{14}C остается в графите. Корреляция между годовой выработкой электроэнергии и выбросами ^{14}C отсутствует. Это может быть связано с различными технологическими процессами при эксплуатации графитоводных реакторов.

3.6 Ретроспективная оценка величины годового выброса ^{14}C

Оценка годового выброса ^{14}C была рассчитана по формуле:

$$Q = \frac{A_V \cdot 3,15 \cdot 10^7}{K_f \cdot G_{n,i}}, \quad (3.2)$$

где $3,15 \cdot 10^7$ – коэффициент перехода, с/год;

$G_{n,i}$ – среднегодовой метеорологический фактор разбавления (ФР) в приземном слое атмосферы на расстоянии x от i -го источника в направлении ветра n -го румба, с/м³;

K_f – коэффициент, учитывающий вегетационный период, в течение которого происходит фотосинтез.

A_V – среднегодовая объемная активность ^{14}C в атмосферном воздухе на участке обора проб.

$$A_V = \Delta A C_{cm}, \quad (3.3)$$

где ΔA – разница между измеренной и фоновой удельной активностью, Бк/кг С;

C_{cm} – концентрация стабильного углерода в воздухе, кг С/м³. Концентрация стабильного углерода согласно [68] составляет $2 \cdot 10^{-4}$ кг С/м³ (по данным на 2012 г.), согласно [69] – $1,6 \cdot 10^{-4}$ кг С/м³ (по данным на 1976 г.). C_{cm} рассчитывалась для каждого года с учетом концентрации CO_2 в атмосферном воздухе [70].

Белоярская АЭС и АО «ИРМ»

В табл. 3.10 представлены расчеты величины годового выброса ^{14}C Белоярской АЭС и АО «ИРМ» с 1970 по 2020 г. с учетом доли органических соединений радиоуглерода в выбросах АО «ИРМ». Коэффициент K_f был рассчитан при условии, что выброс ^{14}C осуществлялся в течение года непрерывно, фотосинтез сосен происходил на протяжении 6 месяцев в году: с апреля по сентябрь, и световой день в этот период в среднем составлял 16 часов в сутки. Тогда $K_f = \frac{6}{12} \cdot \frac{16}{24} = 0,33$.

Таблица 3.10. Расчеты величины годового выброса ^{14}C Белоярской АЭС (1 и 2 очередь) и АО «ИРМ»

Год	$C_{ст}$	$G_{n,i}$, с/м^3	Величина годового выброса ^{14}C , 10^{12} Бк	
			$^{14}\text{CO}_2$	$^{14}\text{CO}_2 + ^{14}\text{C-орг}$ и ^{14}CO
1970	0,162	$1,37 \cdot 10^{-7}$	$3,1 \pm 0,9$	$3,1 \pm 0,9$
1980	0,168	$1,37 \cdot 10^{-7}$	$7,0 \pm 3,0$	$7,0 \pm 3,0$
1990	0,176	$1,37 \cdot 10^{-7}$	$4,5 \pm 2,1$	$4,5 \pm 2,1$
1993	0,177	$5,50 \cdot 10^{-7}$	$0,9 \pm 0,3$	$2,1 \pm 0,6$
1994	0,178	$5,50 \cdot 10^{-7}$	$2,2 \pm 0,4$	$5,1 \pm 0,8$
1995	0,179	$5,50 \cdot 10^{-7}$	$4,0 \pm 1,2$	$9,2 \pm 2,6$
2000	0,183	$5,50 \cdot 10^{-7}$	$3,1 \pm 0,3$	$7,1 \pm 0,7$
2005	0,188	$5,50 \cdot 10^{-7}$	$3,7 \pm 0,4$	$8,5 \pm 0,9$
2010	0,193	$5,50 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \pm 0,3$	$2,5 \pm 0,6$
2015	0,199	$5,50 \cdot 10^{-7}$	$1,2 \pm 0,3$	$2,8 \pm 0,7$
2020	0,205	$5,50 \cdot 10^{-7}$	$2,4 \pm 0,4$	$5,5 \pm 0,9$

Выброс ^{14}C в период с 1970 по 1990 г. главным образом обусловлен эксплуатацией графитоводных ядерных реакторов АМБ-100 и АМБ-200. Ввод в эксплуатацию реактора БН-600 на быстрых нейтронах незначительно повлиял на выброс ^{14}C , поскольку, в отличие от графитоводных реакторов, реакторы на быстрых нейтронах имеют на порядок меньший показатель удельного выброса ^{14}C (количество выбрасываемого в атмосферу ^{14}C на единицу произведенной электроэнергии): $1,4 \cdot 10^{-2}$ и $1,6 \cdot 10^{-1}$ ГБк/ГВт·ч соответственно [71]. После вывода из эксплуатации АМБ-100 и АМБ-200 основным техногенным источником поступления ^{14}C стала деятельность АО «ИРМ» по обращению с изотопной продукцией, которая началась в 1994 г.

Полученные результаты хорошо согласуются с данными из отчетов по экологической безопасности. Годовой выброс $^{14}\text{CO}_2$ АО «ИРМ» в 2018 г. составил $3,41 \cdot 10^{11}$ Бк [72], Белоярской АЭС в 2020 г. – $1,02 \cdot 10^9$ Бк [73].

Курская АЭС

Оценка величины годового выброса Курской АЭС представлена в табл. 3.11. Метеорологический ФР был оценен для каждого года, где это возможно. Для остальных было использовано усредненное значение за весь период наблюдений на метеостанции. Коэффициент K_f был рассчитан при условии, что выброс ^{14}C осуществлялся в течение года непрерывно, фотосинтез деревьев происходил на протяжении 7 месяцев в году: с апреля по октябрь, и световой день в этот период в среднем составлял 14,3 часа в сутки. Тогда $K_f = \frac{7}{12} \cdot \frac{14,3}{24} = 0,35$.

Таблица 3.11 – Расчеты величины годового выброса ^{14}C Курской АЭС

Год	$C_{ст}$	$G_{n,i}$, $\text{с}/\text{м}^3$	Величина годового выброса ^{14}C , 10^{12} Бк
1976	0,165	$4,93 \cdot 10^{-8}$	8,1
1980	0,168		7,5
1984	0,171		2,7
1986	0,172		3,0
1988	0,174		7,0
1990	0,176		5,6
1994	0,178		1,7
1998	0,182		1,3
2002	0,185		5,6
2006	0,190		$3,46 \cdot 10^{-8}$
2010	0,193	$3,19 \cdot 10^{-8}$	2,3
2014	0,198	$4,70 \cdot 10^{-8}$	23,7
2018	0,203	$6,22 \cdot 10^{-8}$	28,3
2020	0,205	$5,76 \cdot 10^{-8}$	1,2

Из табл. 3.4 видно, что наибольшая величина выброса наблюдается в период восстановления графитовой кладки – с 2013 по 2019 г.

Выводы

1. Впервые выполнена ретроспективная оценка величины годового выброса ^{14}C от деятельности АО «ИРМ» и Белоярской АЭС. В период с 1970 по 1990 гг. основным источником поступления ^{14}C в атмосферу были графитоводные энергоблоки АМБ-100 и АМБ-200, с 1994 г. выброс техногенного радиоуглерода главным образом обусловлен деятельностью АО «ИРМ» в связи с началом промышленной наработки изотопной продукции. При ретроспективной оценке величины годового выброса ^{14}C АО «ИРМ» выполнена поправка на долю органических соединений.

2. Активность органического ^{14}C в выбросах АО «ИРМ» составляла от $1,2 \cdot 10^{12}$ до $4,8 \cdot 10^{12}$ Бк/год

3. Впервые выполненная ретроспективная оценка величины годового выброса ^{14}C Курской АЭС показала, что работы по демонтажу и замене графитовой кладки ядерных установок приводят к многократному увеличению выброса ^{14}C (по сравнению с нормальными условиями).

Представленные в данной главе результаты являются обоснованием **второго защищаемого положения:**

Разработанные и используемые в работе приборные и методические подходы определения удельной активности и химических форм ^{14}C позволили впервые выполнить ретроспективную оценку годового выброса радиоуглерода на протяжении всего жизненного цикла предприятия атомной отрасли.

ГЛАВА 4. РЕТРОСПЕКТИВНАЯ ОЦЕНКА ГОДОВОЙ ЭФФЕКТИВНОЙ ДОЗЫ В РЕЗУЛЬТАТЕ ВЫБРОСОВ ^{14}C

Ретроспективная оценка годовой эффективной дозы позволяет определить воздействие на население техногенного ^{14}C в отсутствие штатных методов контроля на объектах использования атомной энергии. В основе метода лежит подход, который подразумевает, что концентрация ^{14}C в годичном кольце дерева соответствует среднегодовой концентрации окружающего атмосферного воздуха. Таким образом, зная ОА радиоуглерода на участке потенциального воздействия, можно оценить годовые эффективные дозы, им обусловленные.

4.1. Описание метода

На сегодняшний день подход МАГАТЭ к оценке годовых эффективных доз от выбросов ^{14}C консервативен. Он предполагает, что вся потребляемая населением пища состоит только из местных продуктов и, как следствие, содержание ^{14}C в продуктах питания, тканях человека и атмосферном воздухе принимается равновесным. Тогда оценку ожидаемой годовой дозы внутреннего облучения D (Зв/год) от ^{14}C , содержащегося в атмосферном воздухе в виде углекислого газа $^{14}\text{CO}_2$, можно получить по следующей формуле [74]:

$$D = A_V G / C_{cm}, \quad (4.1)$$

где $G = 5,6 \cdot 10^{-5}$ – фактор конверсии, связывающий годовую дозу внутреннего облучения от ^{14}C (Зв/год) с его концентрацией в тканях человека в расчете на 1 грамм стабильного углерода [74];

$C_{cm} = 1,8 \cdot 10^{-4}$ кг/м³ – концентрация стабильного углерода в воздухе.

Поскольку основным путем облучения от ^{14}C является пища, а доля потребления местных продуктов не всегда превышает долю привозных, разумно предположить, что равновесия ^{14}C может и не наблюдаться. Это учтено в следующем подходе для расчета годовой эффективной дозы [75, 76]:

$$D = \varepsilon_{ing} U A_V + \varepsilon_{food} \sum_i \alpha_i R_i A_{food,i}, \quad (4.2)$$

где $\varepsilon_{ing} = 6.5 \cdot 10^{-12}$ Зв/Бк – коэффициент дозового преобразования при ингаляции ^{14}C (для взрослого человека при ингаляции ^{14}C в форме CO_2) [77] (в расчетах консервативно принималось, что весь вдыхаемый радиоуглерод находится в форме $^{14}\text{CO}_2$);

$U = 8.1 \cdot 10^3$ м³/год – интенсивность дыхания для взрослого человека [78];

$\varepsilon_{food} = 5,8 \cdot 10^{-10}$ Зв/Бк – коэффициент дозового преобразования при пищевом поступлении ^{14}C (для взрослого человека) [78];

α_i – доля i -го продукта местного производства в рационе населения;

R_i – годовое потребление i -го продукта населением, кг;

$A_{food,i}$ – удельная активность ^{14}C в местном продукте питания, Бк/кг.

Удельную активность ^{14}C в пищевом продукте, исходя из равновесия ^{14}C между атмосферным воздухом и местными продуктами растительного или животного происхождения, рассчитывали по формуле:

$$A_{food,i} = A_V f_{p,i} / C_{st}, \quad (4.3)$$

где $f_{p,i}$ – доля стабильного углерода в продукции растительного или животного происхождения, кг С/кг продукции [65].

В табл. 4.1 представлены годовые эффективные дозы, обусловленные природным радиоуглеродом. Для неконсервативного модернизированного подхода, учитывающего реальную корзину питания региона, выполнены отдельные оценки для Свердловской и Курской областей.

Таблица 4.1 Годовые эффективные дозы от природного ^{14}C

Год	Годовая эффективная доза, мкЗв		
	Подход МАГАТЭ (Курская и Свердловская обл.)	С учетом реальной корзины питания региона	
		Свердловская обл.	Курская обл.
1970	18,9	6,5	9,2
1976	17,1	5,9	8,3
1980	16,1	5,5	7,8
1984	15,9	5,5	7,7
1986	15,5	5,3	7,5
1988	14,6	5,0	7,1
1990	14,6	5,0	7,1
1993	14,3	4,9	7,0
1994	14,3	4,9	6,9
1995	14,2	4,9	6,9
1998	14,0	4,8	6,8
2000	13,6	4,7	6,6
2002	13,4	4,6	6,5
2005	13,2	4,6	6,4
2006	13,2	4,5	6,4
2010	13,0	4,5	6,3
2014	12,9	4,5	6,3
2015	12,8	4,4	6,2
2018	12,8	4,4	6,2
2020	12,7	4,4	6,2

Из табл. 4.1. следует, что для Курской и Свердловской областей величина годовых эффективных доз отличается для модернизированного подхода. Это обусловлено разными корзинами питания регионов.

4.2. Расчет годовых эффективных доз от выброса ^{14}C Белоярской АЭС и АО «ИРМ»

Расчет годовых эффективных доз проводился двумя методами. Подход МАГАТЭ (формула 4.1) и неконсервативный подход (формула 4.2). Для неконсервативного подхода необходимо учитывать реальную корзину питания региона. В табл. 4.2 представлены данные о потреблении продуктов в Свердловской области взрослым сельским населением.

Таблица 4.2. Годовое потребление пищевых продуктов населением Свердловской области, проживающим в районе расположения АЭС

Продукты питания	Годовое потребление сельским населением, кг [79]	Доля местных продуктов в рационе, % [79]	Доля углерода в продукции, кг С/кг [65]
Молоко	226,9	8,5	0,065
Мясо	74,6	22,0	0,2
Хлеб	93,6	50,0	0,39
Картофель	64,1	92,1	0,046
Овощи	92,5	69,5	0,059
Фрукты	72,4	67,1	0,062

В табл. 4.3 представлены результаты расчетов годовых эффективных доз от выброса ^{14}C Белоярской АЭС и АО «ИРМ», а также оценен вклад техногенного радиоуглерода в дозовые нагрузки на население. При расчете доз также использовалась поправка на период вегетации (K_f).

Таблица 4.3. Результаты расчетов годовых эффективных доз в результате выброса радиоуглерода Белоярской АЭС и АО «ИРМ»

Год	Годовая эффективная доза, мкЗв		Вклад техногенного ^{14}C в дозу, %
	Подход МАГАТЭ	Неконсервативный подход	
1970	4,65	1,60	19,7
1980	9,58	3,30	37,3
1990	6,22	2,14	29,9
1993	4,31	1,49	23,2
1994	12,79	4,40	47,2
1995	23,71	8,16	62,5
2000	16,66	5,74	55,1
2005	18,65	6,42	58,5
2010	5,97	2,05	31,5
2015	6,43	2,22	33,4
2020	11,33	3,90	47,1

Из табл. 4.3. видно, что диапазоны годовых эффективных доз при использовании подхода МАГАТЭ составляют 4,65–23,71 мкЗв, а при неконсервативном подходе почти в 3 раза меньше: 1,60–8,16 мкЗв. Наибольшие годовые эффективные дозы обусловлены деятельностью АО «ИРМ» по промышленной наработке изотопа ^{14}C . При этом техногенный вклад в дозу составляет 19,7–62,5 %, по сравнению с радиоуглеродом природного происхождения (табл. 4.1). Годовая доза облучения населения за рассмотренный период не превышает минимально значимую дозу 10 мкЗв [80] для второго подхода, учитывающего корзину питания региона.

4.3. Расчет годовых эффективных доз от выброса ^{14}C Курской АЭС

Расчет годовых эффективных доз от выброса ^{14}C Курской АЭС также выполнен с помощью двух подходов (формулы 4.1, 4.2). В табл. 4.3 представлены данные по потреблению продуктов в Курской области.

Таблица 4.3. Годовое потребление пищевых продуктов населением Курской области, проживающим в районе расположения АЭС

Продукты питания	Годовое потребление сельским населением, кг [79]	Доля местных продуктов в рационе, % [79]	Доля углерода в продукции, кг С/кг [65]
Молоко	254,8	34,3	0,065
Мясо	93,7	45,7	0,2
Хлеб	89,5	50,0	0,39
Картофель	103,4	90,7	0,046
Овощи	101,9	89,3	0,059
Фрукты	72,9	93,6	0,062

В табл. 4.4 представлены результаты расчетов годовых эффективных доз от выброса ^{14}C Курской АЭС, также оценен вклад техногенного радиоуглерода в дозовые нагрузки на население.

Таблица 4.4. Ретроспективная оценка годовых эффективных доз в результате выброса ^{14}C Курской АЭС

Год	Годовая эффективная доза, мкЗв		Вклад техногенного ^{14}C в годовую эффективную дозу, %
	Подход МАГАТЭ	Неконсервативный подход	
1976	3,97	1,91	18,8
1980	3,00	1,46	15,7
1984	1,23	0,60	7,2
1986	1,37	0,66	8,1
1988	3,23	1,57	18,1
1990	2,51	1,23	14,7
1994	1,63	0,80	10,2
1998	1,00	0,49	6,7
2002	1,14	0,54	7,9
2006	5,31	2,57	28,7
2010	1,89	0,91	12,7
2014	15,14	7,37	54,0
2018	13,09	6,37	50,6
2020	0,49	0,23	3,7

Из табл. 4.4. видно, что диапазоны годовых эффективных доз при использовании подхода МАГАТЭ составляют 0,49–15,14 мкЗв, а при неконсервативном модернизированный подходе в 2 раза меньше: 0,23–5,31 мкЗв. Наибольшая величина годовых эффективных доз обусловлена процессами по восстановлению графитовой кладки ядерных реакторов. В этот период вклад в годовую эффективную дозу от облучения техногенным

радиоуглеродом сопоставим со вкладом природного. Годовая доза облучения населения за рассмотренный период не превышает минимально значимую дозу 10 мкЗв/год [80] для второго подхода, учитывающего корзину питания региона.

4.4. Разработка программного обеспечения для ретроспективной оценки годовых эффективных доз от выброса ^{14}C

С целью автоматического расчета годовых эффективных доз от выброса ^{14}C АЭС России было разработано специально программное обеспечение. Данное ПО позволяет выполнить ретроспективную оценку выброса ^{14}C для 10 атомных электростанций России (Балаковская, Белоярская, Билибинская, Калининская, Кольская, Курская, Ленинградская, Нововоронежская, Ростовская, Смоленская). В программе реализованы как метод МАГАТЭ, так и учитывающий реальную корзину питания метод оценки годовых эффективных доз. Для этого в программном коде предустановлены корзины питания десяти регионов России, а также фоновые значения ОА радиоуглерода в период с 1954 по 2022 г. Окно интерфейса представлено на рис. 4.1. Код программы представлен в приложении А. Для расчета ретроспективной оценки эффективной дозы от выброса ^{14}C определенной станцией в определенный год необходимо выбрать одну из десяти АЭС, интересующий год, а также указать удельную активность ^{14}C в древесном кольце этого года в рМС. В результате на экране отобразятся 3 значения: объемная активность ^{14}C в воздухе на территории, на которой были отобраны пробы, годовая эффективная доза, рассчитанная по методологии МАГАТЭ (формула 4.1) и с учетом реальной корзины питания региона расположения атомной станции (формула 4.2). Пример расчета представлен на рис. 4.2.

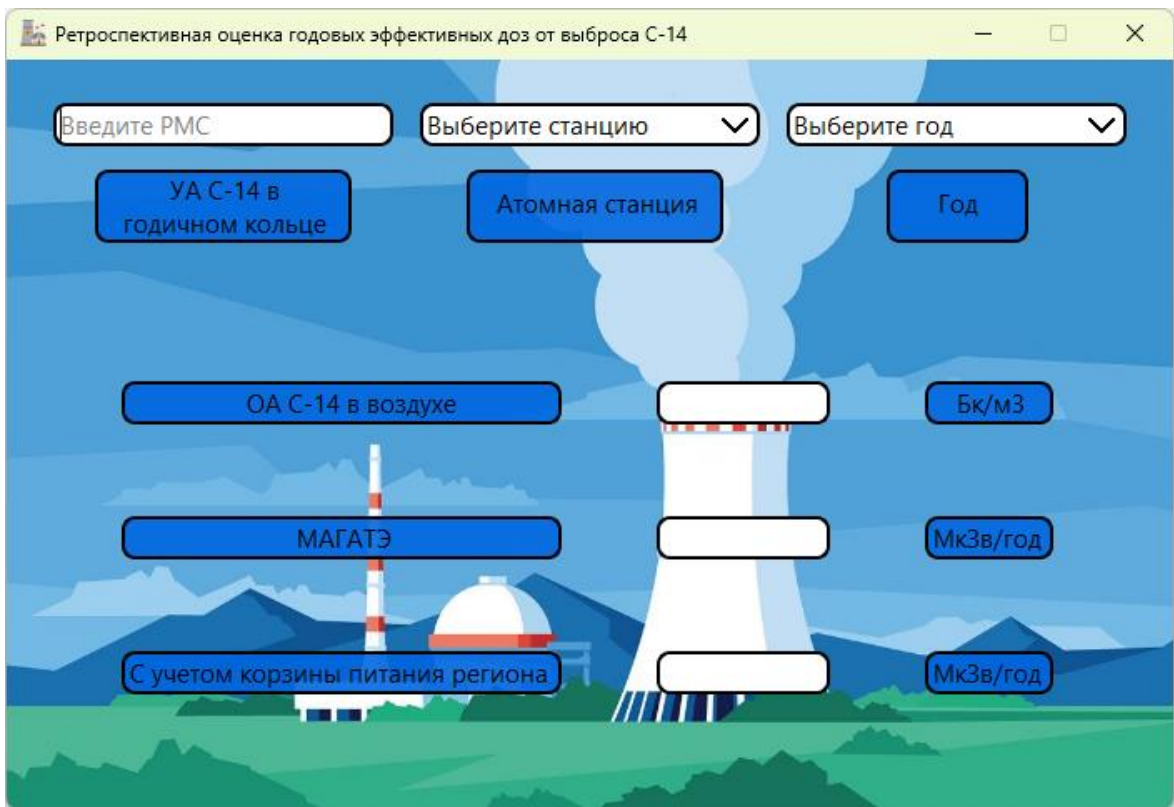


Рис. 4.1. Интерфейс программы для ретроспективной оценки годовых эффективных доз

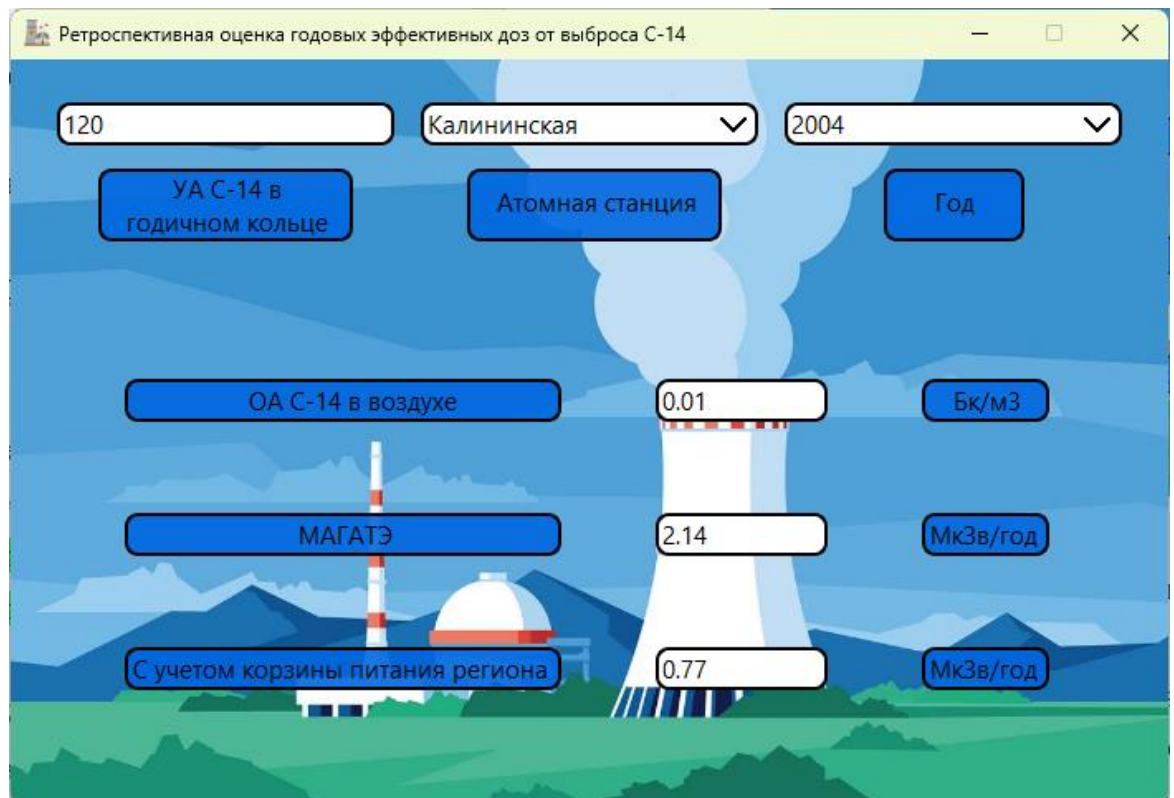


Рис. 4.2. Пример расчета годовой эффективной дозы

Выводы

В данной главе выполнены ретроспективные оценки годовых эффективных доз, обусловленных выбросом радиоуглерода в результате эксплуатации предприятий атомной отрасли. Оценки выполнены на основании того, что концентрация ^{14}C в годичном кольце дерева соответствует среднегодовой концентрации в окружающем атмосферном воздухе. Оценки выполнены по двум подходам. При использовании модернизированного подхода, учитывающего реальную корзину питания региона, значения годовых эффективных доз в 2–3 раза ниже, по сравнению с консервативным подходом МАГАТЭ. Для подхода, учитывающего реальную корзину питания, значения годовых эффективных доз не превышают минимально значимую дозу 10 мкЗв/год [80].

Для выполнения ретроспективной оценки годовых эффективных доз разработано программное обеспечение.

Представленные в данной главе результаты являются обоснованием **третьего защищаемого положения:**

Выполненный анализ показал, что при использовании подхода, учитывающего корзину питания региона, значения годовых эффективных доз не превышают 10 мкЗв от прошедшей деятельности рассмотренных предприятий атомной отрасли.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В диссертации представлены результаты разработки и апробации специального мобильного стенда, который позволяет производить отбор проб ^{14}C в различных химических формах. Описан метод ретроспективной оценки выброса ^{14}C предприятиями атомной отрасли. Метод основан на УМС-анализе годовых колец деревьев, произрастающих на территории воздействия источника выброса. Предложен метод ретроспективной оценки годовых эффективных доз в результате выбросов ^{14}C объектами использования атомной энергии. На основании проведенных экспериментальных и теоретических исследований можно сделать следующие выводы:

1. Разработанный пробоотборный стенд позволяет проводить одновременный отбор радиоуглерода в различных химических формах: $^{14}\text{CO}_2$, ^{14}CO и $^{14}\text{C}_{\text{орг}}$ в газоаэрозольных выбросах предприятий атомной отрасли.

2. С помощью разработанного мобильного стенда были отобраны пробы ^{14}C в газоаэрозольных выбросах предприятий, эксплуатирующих водо-водяные исследовательские ядерные реакторы: АО «ИРМ» г. Заречный (ИВВ-2М) и НИФХИ им Л. Я. Карпова, г. Обнинск (ВВР-ц). Результаты измерения проб методом жидкостной сцинтилляционной спектрометрии показали, что органические соединения ^{14}C и ^{14}CO , улавливаемые с помощью каталитической установки, вносят значительный вклад (до 80 %) в объемную активность ^{14}C в выбросах предприятий. Поэтому для адекватной оценки годовых эффективных доз необходимо учитывать все химические соединения ^{14}C в выбросах объектов использования атомной энергии.

3. Предложенный метод ретроспективной оценки выброса ^{14}C предприятиями атомной отрасли основан на УМС-анализе годовых колец деревьев, произрастающих в районе расположения этих предприятий. Метод УМС позволил оценить техногенный вклад в удельную активность ^{14}C в каждом годовом кольце и с помощью метеорологического фактора разбавления были определены значения годовых выбросов радиоуглерода Курской АЭС, Белоярской АЭС и АО «ИРМ».

4. Для Белоярской АЭС наибольшая величина годового выброса ^{14}C – 7 ТБк наблюдалась при одновременной работе графитоводных ядерных реакторов АМБ-100 и АМБ-200. Начало наработки изотопной продукции ^{14}C и последующее обращение с ним в АО «ИРМ» привело к росту активности ^{14}C в выбросах предприятия – до 9,2 ТБк в 1995 г. Для Курской АЭС максимальная величина годового выброса ^{14}C 28 ТБк наблюдалась в период восстановления графитовой кладки реакторов в 2018 г.

5. Ретроспективная оценка годовых эффективных доз в результате выбросов ^{14}C продемонстрировала, что при использовании подхода, учитывающего реальную корзину питания региона, значения доз не превышают 10 мкЗв. Основной вклад в дозовые нагрузки от облучения ^{14}C обычно вносит природный радиоуглерод.

Рекомендации и перспективы дальнейшей работы. Дальнейшей перспективой развития темы диссертационного исследования является изучение состава выбросов ^{14}C от ядерного энергетического реактора типа ВВЭР и РБМК, выполнение ретроспективной оценки выброса радиоуглерода от эксплуатации Ленинградской АЭС с реакторными установками типа ВВЭР и РБМК, Билибинской АЭС (ЭГП-6) и др.

ТЕРМИНЫ И ОПРЕДЕЛЕНИЯ

В настоящей работе применяются следующие термины с соответствующими определениями.

Активная зона – пространство ядерного реактора, в котором происходит контролируемая цепная реакция деления ядер тяжелых изотопов урана или плутония. В ходе цепной реакции выделяется энергия в виде нейтронного и γ -излучения, β -распада, кинетической энергии осколков деления.

Активность – величина какого-либо количества радионуклида, находящегося в данном энергетическом состоянии в данный момент времени, определяемая как отношение ожидаемого числа спонтанных ядерных превращений из данного энергетического состояния dN к промежутку времени dt .

Барботаж – процесс пропускания газа или пара через слой жидкости.

Детектор ионизирующего излучения – средство измерения, предназначенное для преобразования энергии излучения в форму, пригодную для регистрации или измерения.

Замедлитель – материал в активной зоне реактора, который позволяет уменьшить энергию нейтронов до тепловых.

Кампания ядерного реактора – время работы реактора с одной и той же загрузкой ядерного топлива.

Катализатор – химическое вещество, ускоряющее реакцию, но не расходующееся в процессе реакции.

Масс-спектрометрия – метод исследования и идентификации вещества, позволяющий определять концентрацию различных компонентов в нем (изотопный, элементный или химический состав).

Метеорологический фактор разбавления – отношение среднегодовой объемной активности в приземном слое воздуха к среднегодовой мощности выброса в атмосферу.

Объект использования атомной энергии – ядерная установка, радиационный источник, пункт хранения ядерных материалов и радиоактивных веществ, хранилище радиоактивных отходов.

Поток частиц – отношение числа частиц dN , пересекающих заданную поверхность за интервал времени dt , к этому интервалу.

Теплоноситель – жидкое или газообразное вещество, пропускаемое через активную зону реактора и выносящее из нее тепло, выделяющееся в результате реакции деления ядер.

Удельная активность – активность на единицу массы или объема материала, в котором радионуклиды в основном распределены равномерно.

Эффективная доза – мера риска возникновения отдаленных последствий облучения (стохастических эффектов) всего тела человека и отдельных его органов и тканей с учетом их радиочувствительности.

Ядерный реактор – установка, в которой осуществляется самоподдерживающаяся управляемая цепная ядерная реакция деления, которая сопровождается выделением энергии.

pMC (Percent Modern Carbon) – единицы измерения активности ^{14}C ,
 $100 \text{ pMC} \approx 227 \text{ Бк/кг С}$.

СОКРАЩЕНИЯ И ОБОЗНАЧЕНИЯ

- АМБ – атом мирный большой
АЭС – атомная электростанция
ВВЭР – водо-водяной энергетический реактор
ГВС – газоздушная смесь
ЖСС – жидкостная сцинтилляционная спектрометрия
ИРМ – институт реакторных материалов
МАГАТЭ – Международное агентство по атомной энергетике
МДА – минимальная детектируемая активность
ОА – объемная активность
ОИАЭ – объект использования атомной энергии
ОЯТ – отработанное ядерное топливо
ПАВ – поверхностно-активные вещества
ПО – программное обеспечение
РУ – реакторная установка
ТВЭЛ – тепловыделяющий элемент
УА – удельная активность
УМС – ускорительная масс-спектрометрия
ФР – фактор разбавления
ФЭУ – фотоэлектронный умножитель
BWR – кипящий реактор
СРМ – импульсов в минуту
CPS – импульсов в секунду
FBR – реактор-размножитель на быстрых нейтронах
GCR – газоохлаждаемый реактор
HTGR – высокотемпературный газоохлаждаемый реактор
HWGCR – газоохлаждаемый реактор с тяжеловодным замедлителем
HWLWR – кипящий реактор с замедлителем из тяжелой воды
LWGR – графито-водный ядерный реактор
pMC – percent modern carbon

PWR – реактор с водой под давлением

SGHWR – кипящий тяжеловодный реактор

VVER – водо-водяной реактор

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ:

1. Key World Energy Statistics 2021 / IEA. Paris: International Energy Agency, 2021. – 80 p.
2. Мониторинг окружающей среды и источников для целей радиационной защиты. Руководство по безопасности № RS-G-1.8 / МАГАТЭ. Вена : Международное агентство по атомной энергии, 2016. – 168 с.
3. Санитарные правила проектирования и эксплуатации атомных станций (СП АС-03): СанПин 2.6.1.24-03. – Москва, 2003.
4. **Vasyanovich, M. E.** Determination of radionuclide composition of the Russian NPPs atmospheric releases and dose assessment to population / M. E. Vasyanovich, A. A. Ekinin, A. V. Vasilyev [et al.] // Journal of Environmental Radioactivity. – 2019. – Vol. 208–209. – P. 106006.
5. European Commission Radioactive Discharges Database for collecting, storing, exchanging and dissemination of information on radioactive discharges. – URL: <https://europa.eu/radd/> (Дата обращения: 30.04.2023).
6. **Пышкина, М. Д.** Определение основных дозообразующих нуклидов в выбросах АЭС PWR и ВВЭР / М. Д. Пышкина // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. – 2017. – № 2(18). – С. 98–107.
7. INPRO Methodology for Sustainability Assessment of Nuclear Energy Systems: Environmental Impact of Stressors. IAEA Nuclear Energy Series. No. NG-T-3.15 / IAEA. – Vienna : International Atomic Energy Agency, 2016. – 94 p.
8. Management of waste containing tritium and carbon-14. Technical Reports Series No. 421 / IAEA. – Vienna : International Atomic Energy Agency, 2004. – 109 p.
9. **Рублевский, В. П.** Особенности радиационного и биологического действия ^{14}C на живые организмы и опасность его накопления в

- биосфере Земли / В. П. Рублевский, В. Н. Яценко // Атомная энергия. – 2018. – Т. 125. № 5. – С. 301–306.
10. Проект «Прорыв». Росатом. – URL: <https://proryv2020.ru/> (Дата обращения: 30.04.2023).
 11. Commission on Isotopic Abundances and Atomic Weights. Carbon. – URL: <https://www.ciaaw.org/carbon.htm> (Дата обращения: 30.04.2023).
 12. **Kurie, F. N. D.** A New Mode of Disintegration Induced by Neutrons / F. N. D. Kurie // *Physical Review*. – 1934. – Vol. 45, № 12. – P. 904–905.
 13. **Burcham, W. E.** The disintegration of nitrogen by slow neutrons / W. E. Burcham, M. Goldhaber // *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*. – 1936. – Vol. 32, № 4. – P. 632–636.
 14. **Ruben, S.** Radioactive Carbon of Long Half-Life / S. Ruben, M. D. Kamen // *Physical Review*. – 1940. – Vol. 57, № 6. – P. 549.
 15. **Reid, A. F.** Half-life of C^{14} / A. F. Reid, J. R. Dunning, S. Weinhouse [et al.] // *Physical Review*. – 1946. – Vol. 70, № 5–6. – P. 431.
 16. **Norris, W. D.** Half-life Determination of Carbon (14) with a Mass Spectrometer and Low Absorption Counter / W. D. Norris, M. G. Inghram // *Physical Review*. – 1946. – Vol. 70, № 9–10. – P. 772–773.
 17. **Engelkemeir, A. G.** The Half-Life of Radiocarbon (C^{14}) / A. G. Engelkemeir, W. H. Hamill, M. G. Inghram [et al.] // *Physical Review*. – 1949. – Vol. 75, № 12. – P. 1825–1833.
 18. **Arnold, J. R.** Determinations by Radiocarbon Content: Checks with Samples of Known Age / J. R. Arnold, W. F. Libby // *Science*. – 1949. – Vol. 110, № 2869. – P. 678–680.
 19. Monographie BIPM-5. Table of Radionuclides (Vol. 7 A = 14 to 245). Bureau International Des Poids et Mesures. – 2013. – 246 p.
 20. **Kocher, D. C.** Nuclear decay data for radionuclides occurring in routine releases from nuclear fuel cycle facilities / D. C. Kocher // Report ORNL/NUREG/TM 102. – 1977. United States. – 101 p.

21. **Sato, T.** Analytical functions to predict cosmic-ray neutron spectra in the atmosphere / T. Sato, K. Niita // *Radiation Research*. – 2006. – Vol. 166. – P. 544–555.
22. **Stenström, K.** A guide to radiocarbon units and calculations / **K. Stenström, G. Skog, E. Georgiadou** [et al] // Internal Report LUNFD6(NFFR-3111)/1–17. – 2011. – 17 p.
23. **Сахаров, А. Д.** Радиоактивный углерод ядерных взрывов и непороговые биологические эффекты / А. Д. Сахаров // *Атомная энергия*. – 1958. – Т. 4, № 6. – С. 576–580.
24. **Рублевский, В. П.** Роль углерода-14 в техногенном облучении человека / В. П. Рублевский, В. Н. Яценко, Е. Г. Чанышев. – Москва : Издательство по Атомной науке и технике, 2004. – 197 с.
25. The Power Reactor Information System (PRIS) – URL: <https://www.iaea.org/PRIS> (Дата обращения: 30.04.2023).
26. **Magnusson, Å.** ^{14}C produced by nuclear power reactors, Generation and characterization of gaseous, liquid and solid waste / Å. Magnusson; PhD thesis. Lund University. – 2007. – 151 p.
27. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the General Assembly with scientific annexes Vol I / UNSCEAR. – New York : United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000. – 654 p.
28. The Management of Carbon-14 in Canadian Nuclear Facilities / ACRP-14. – Ottawa : Advisory Committee on Radiological Protection, 1995. – 42 p.
29. **Hou, X.** Tritium and ^{14}C in the Environment and Nuclear Facilities: Sources and Analytical Methods / X. Hou // *Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology*. – 2018. – Vol. 16, № 1. – P. 11–39.
30. Setting Authorized Limits for Radioactive Discharges: Practical Issues to Consider. IAEA-TECDOC-1638 / IAEA. – Viena : International Atomic Energy Agency, 2010. – 70 p.

31. Критерий согласия: Критерий Колмагорова. – URL: <https://nsu.ru/mmfvims/chernova/ms/lec/node45.html>. (Дата обращения 30.04.23)
32. **Shapiro, S.S.** An analysis of variance test for normality (complete samples) / S. S. Shapiro, M. B. Wilk // *Biometrika*. – 1965. – Vol. 52, № 3/4. – P. 591–611.
33. **Кобзарь, А.И.** Прикладная математическая статистика / А. И. Кобзарь. – Москва : Физматлит, 2006. – 816 с.
34. **Uchrin G.** ^{14}C releases from a Soviet-designed pressurized water reactor nuclear power plant / G. Uchrin, E. Csaba, E. Hertelendi [et al.] // *Health Physics*. – 1992. – Vol. 63, №6. – P. 651–655.
35. **Koarashi, J.** Monitoring Methodologies and Chronology of Radioactive Airborne Releases from Tokai Reprocessing Plant / J. Koarashi., S. Mikami, A. Nakada [et al.] // *Journal of Nuclear Science and Technology*. – 2008. Vol. 45, Sup. 5. – P. 462–465.
36. **Joshi, M. L.** Measurement of ^{14}C emission rates from a pressurized heavy water reactor / M. L. Joshi, B. Ramamirtham, S. D. Soman // *Health Physics*. – 1987. – Vol. 52. – P. 787–791.
37. **Eisma, R.** $^{14}\text{CH}_4$ Emissions from Nuclear Power Plants in Northwestern Europe / R. Eisma, A. Vermeulen, K. Van Der Borg // *Radiocarbon*. – 1995. – Vol. 37, № 2. – P. 475–483.
38. **Vokal, B.** Radiocarbon Releases at the Krško Nuclear Power Plant / B. Vokal, I. Kobal // *Radiocarbon*. – 1997. – Vol. 39, № 3. – P. 285–292.
39. **Uchrin, G.** ^{14}C Measurements at PWR-Type Nuclear Power Plants in Three Middle European Countries. / G. Uchrin, E. Hertelendi, G. Volent [et al.] // *Radiocarbon*. – 1997. – Vol. 40, №1. – P.439–446.
40. **Hertelendi, E.** ^{14}C Release in Various Chemical Forms with Gaseous Effluents from the Paks Nuclear Power Plant / E. Hertelendi, G. Uchrin, P. Ormai // *Radiocarbon*. – 1989. – Vol. 31, №1. – P.754–761.

41. **Veres, M.** Concentration of Radiocarbon and Its Chemical Forms in Gaseous Effluents, Environmental Air, Nuclear Waste and Primary Water of a Pressurized Water Reactor Power Plant in Hungary / M. Veres, E. Hertelendi, G. Uchrin // *Radiocarbon*. – 1995. – Vol. 37, № 2. – P. 497–504.
42. **Warner, M.**, Carbon-14 is 75 ± 0 Years Old, National Museum of American History, 2015. – URL: <https://americanhistory.si.edu/blog/carbon-14> (Дата обращения: 30.04.2023).
43. **Povinec, P.** Developments in Radiocarbon Technologies: From the Libby Counter to Compound-Specific AMS Analyses / P. Povinec, A. Litherland, K. Von Reden // *Radiocarbon*. – 2009. – Vol. 51. – № 1. P. 45–78.
44. **Назаров, Е. И.** Приборы и методы измерения ^{14}C (обзор) / Е. И. Назаров, А. В. Кружалов, А. А. Екидин [и др.] // *Приборы и техника эксперимента*. – 2021. – № 6. – С. 8–14.
45. **de Vries, Hl.** Radio-carbon dating by a proportional counter filled with carbondioxide / Hl. de Vries, G. W. Barendsen // *Physica*. – 1953. – Vol. 19. № 1–12. P. 987–1003.
46. **L'Annunziata, M. F.** Liquid Scintillation Analysis / M. F. L'Annunziata, M. J. Kessler // *Handbook of Radioactivity Analysis*. – 2012. – P. 423–573.
47. **Bennett, C. L.** Radiocarbon Dating Using Electrostatic Accelerators: Negative Ions Provide the Key / C. L. Bennett, R. P. Beukens, M. R. Clover // *Science*. – 1977. – Vol. 198. – P. 508–510.
48. **Muller, R. A.** Radioisotope Dating with a Cyclotron / R. A. Muller // *Science*. – 1977. – Vol. 196. – P. 489–494.
49. **Nelson, D. E.** Carbon-14: Direct Detection at Natural Concentrations / D. E. Nelson, R. G. Korteling, W. R. Stott // *Science*. – 1977, Vol. 198. – P. 507–508.

50. **Алиновский, Н. И.** Ускорительный масс-спектрометр СО РАН / Н. И. Алиновский, А. Д. Гончаров, В. Ф. Ключев // Журнал технической физики. – 2009. – Т. 79, № 9. – С. 107–111.
51. **Пархомчук, В. В.** Тонкопленочный детектор для регистрации ионов на ускорительном масс-спектрометре / В. В. Пархомчук, А. В. Петрожицкий, С. А. Растигеев, // Письма в журнал «Физика элементарных частиц и атомного ядра». – 2012. – Т. 9, № 4–5. – С. 729–734.
52. Автоматизированная установка отбора проб УОТ-02 для контроля радиоактивных выбросов. ПО «Маяк». – URL: <https://www.atomic-energy.ru/video/119233> (Дата обращения: 30.04.2023).
53. **Пархомчук, Е. В.** Технология многофункциональной гидропереработки тяжелых остатков (гудрона и мазута) на катализаторах с иерархической структурой пор / Е. В. Пархомчук, К. В. Федотов, А. И. Лысиков [и др.] // Катализ в промышленности. – 2021. – Т. 21, № 5. – С. 331–360.
54. **Nuzhdin, A. L.** Reductive amination of 5-acetoxymethylfurfural over Pt/Al₂O₃ catalyst in a flow reactor / A. L. Nuzhdin, P. A. Simonov, G. A. Bukhtiyarova [et al.] // Molecular Catalysis. – 2021. – Vol. 499, № 111297. – P. 1–5.
55. **Русских, И. М.** Исследовательский ядерный реактор ИВВ-2М / И. М. Русских // Атомная энергия. – 2016. – Т. 121, № 4. – С. 183–186.
56. **Рублевский, В. П.** Энергетические ядерные реакторы АЭС как источники ¹⁴C / В. П. Рублевский, В. Н. Яценко // Атомная энергия. – 2016. – Т. 121, № 2. – С. 113–118.
57. **Levin, I.** 25 years of tropospheric ¹⁴C observations in central Europe / I. Levin, B. Kromer, H. Schoch-Fischer [et al.] // Radiocarbon. – 1985. – Vol. 27, № 1. – P. 1–19.
58. **Hertelendi, E.** Anthropogenic ¹⁴C excess in the troposphere between 1951 and 1978 measured in tree rings / E. Hertelendi, E. Csongor //

- Radiochemical and Radioanalytical Letters. – 1982. – Vol. 56, № 2. – P. 103–110.
59. **Hua, Q.** Review of radiocarbon data from atmospheric and tree ring samples for the period AD 1945–1997 / Q. Hua, M. Barbetti, M. Worbes [et al.] // IAWA Journal. – 1999. – Vol. 20, № 3. – P. 261–283.
60. **Janovics, R.** Radiocarbon Impact on a Nearby Tree of a Light-Water VVER-Type Nuclear Power Plant, Paks, Hungary / R. Janovics, Z. Kern, D. Güttler // Radiocarbon. – 2013. – Vol. 55, № 2. P. 826–832.
61. **Ežerinskis, Ž.** Annual Variations of ^{14}C Concentration in the Tree Rings in the Vicinity of Ignalina Nuclear Power Plant / Ž. Ežerinskis, J. Šapolaitė, A. Pabedinskas [et al.] // Radiocarbon. – 2018. – Vol. 60, № 4. – P. 1227–1236.
62. **Stenstrom, K.** ^{14}C levels in the vicinity of two Swedish nuclear power plants and at two “clean-air” sites in southernmost Sweden / K. Stenstrom, G. Skog, C. Thornberg [et al.] // Radiocarbon. – 1997. – Vol. 40, № 1. – P. 433–438.
63. Разработка и установление нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ атомных станций в атмосферный воздух. Методика. МТ 1.2.1.15.1176-2016. АО «Концерн Росэнергоатом», 2016.
64. Погода в 241 стране мира. – URL: https://rp5.ru/%D0%9F%D0%BE%D0%B3%D0%BE%D0%B4%D0%B0_%D0%B2_%D0%BC%D0%B8%D1%80%D0%B5
65. Carbon-14 and the environment. IRSN Radionuclide Fact Sheet, / IRSN. – France : Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire, 2010. – 19 p.
66. **Lysikov, A.I.** Novel simplified absorption-catalytic method of sample preparation for AMS analysis designed at the Laboratory of Radiocarbon Methods of Analysis (LRMA) in Novosibirsk Akademgorodok / A. I. Lysikov, P. N. Kalinkin, K. A. Sashkina [et al.] // International Journal of Mass Spectrometry. – 2018. – Vol. 433. – P. 11–18.

67. **Nazarov, E. I.** ^{14}C in tree rings in the vicinity of the nuclear facility deployment areas / E. I. Nazarov, A. V. Kruzhalov, M. E. Vasyanovich // Nuclear Energy and Technology. – 2022. – Vol. 8, № 3. – P. 173–177.
68. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. Technical Reports Ser № 472 / IAEA. – Vienna : International Atomic Energy Agency, 2012. – 194 p.
69. Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR Part 50, Appendix I. US Nuclear Regulatory Commission, 1977.
70. NASA. Global climate change. Vital Signs of the Planet. Carbon Dioxide. – URL: <https://climate.nasa.gov/vital-signs/carbon-dioxide/> (Дата обращения: 30.04.2023).
71. **Назаров, Е. И.** Оценка поступления углерода-14 в атмосферу, обусловленного выбросами АЭС / Е. И. Назаров, А. А. Екидин, А. В. Васильев // Известия вузов. Физика. – 2018. – Т. 61, № 12-2. – С. 67–73.
72. Годовой отчет по экологической безопасности АО «ИРМ» 2019. АО «Институт реакторных материалов», 2020.
73. Отчет по экологической безопасности Белоярской АЭС за 2020 год. АО «Концерн Росэнергоатом», филиал Белоярская атомная станция 2021.
74. Generic models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substances to the environment. IAEA Safety Reports Series № 19 / IAEA. – Vienna : International Atomic Energy Agency, 2001. – 216 p.
75. **Назаров Е. И.** Метод оценки дозы облучения населения в результате выбросов ^{14}C предприятиями атомной отрасли / Е. И. Назаров, А. В. Кружалов, А. А. Екидин [и др.] // Атомная энергия. – 2022. – Т. 132, № 6. – С. 353–357.
76. **Крышев А. И.** Оценка дозы облучения населения от выброса ^{14}C АЭС с РБМК-1000 и ЭГП-6 / А. И. Крышев, И. И. Крышев,

- М. Е. Васянович [и др.] // Атомная энергия. – 2020. – Т. 128, № 1. – С. 46–52.
77. Compendium of Dose Coefficients Based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. — Ann. ICRP. – 2012. – Vol. 41, № 1, p. 1–130.
78. IAEA Safety Standards. Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards, No. GSR Part 3 / IAEA. – Vienna : International Atomic Energy Agency, 2014. – 436 p.
79. Разработка и установление нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ атомных станций в атмосферный воздух. Методика. МТ 1.2.1.15.1176–2016. М.: АО «Концерн Росэнергоатом», 2016, 69 с.
80. СанПиН 2.6.1.2523-09. Нормы радиационной безопасности (НРБ 99/09). – М : Минздрав России, 2009.

Приложение А

Исходный код программного обеспечения «Ретроспективная оценка годовых эффективных доз от выброса С-14»

```
main.py
from PyQt6 import QtCore
from PyQt6.QtWidgets import (
    QApplication,
    QLabel,
    QMainWindow,
    QVBoxLayout,
    QWidget,
    QGridLayout,
    QComboBox,
    QLineEdit,
)
from PyQt6.QtGui import QIcon
from PyQt6.QtCore import Qt
import json
from getBackground import get_year
from processing import process
from getResult import get_result

class MainWindow(QMainWindow):

    def __init__(self):
        super().__init__()

        self.setWindowTitle("Ретроспективная оценка годовых эффективных доз от выброса С-14")

        self.setFixedSize(700, 450)

        icon = QIcon("image/icon.ico")
        self.setWindowIcon(icon)

        main_layout = QVBoxLayout()
        layout = QGridLayout()
        layout2 = QGridLayout()

        rmc0_input = QLineEdit()
        rmc0_input.setObjectName('rmc0')
        rmc0_input.setPlaceholderText("Введите РМС")
        rmc0_input.textChanged.connect(self.__rmc0_changed)
        layout.addWidget(rmc0_input, 0, 0)

        stationsComboBox = QComboBox()
        stationsComboBox.setObjectName('station')
        stationsComboBox.setPlaceholderText("Выберите станцию")
        stationsComboBox.addItem(
            ["Балаковская",
             "Белоярская",
             "Билибинская",
             "Калининская",
             "Кольская",
             "Курская",
             "Ленинградская",
             "Нововоронежская",
             "Ростовская",
             "Смоленская"]
        )
        stationsComboBox.currentTextChanged.connect(self.__station_changed)
        layout.addWidget(stationsComboBox, 0, 1)

        yearComboBox = QComboBox()
        yearComboBox.setObjectName('year')
        yearComboBox.setPlaceholderText("Выберите год")
        yearComboBox.addItem(get_year())
        yearComboBox.currentTextChanged.connect(self.__year_changed)
        layout.addWidget(yearComboBox, 0, 2)

        magate = QLabel('МАГАТЭ')
        magate.setObjectName('label6')
```

```

layout2.addWidget(magate, 1, 0)
self.mag = QLineEdit()
self.mag.setObjectName('mag')
layout2.addWidget(self.mag, 1, 1)
self.mag.setReadOnly(True)
unit1 = QLabel('Мк3в/год')
unit1.setObjectName('label7')
layout2.addWidget(unit1, 1, 2)
label1 = QLabel("УА С-14 в\nгодовичном кольце")
label1.setAlignment(Qt.AlignmentFlag(value=5))
label1.setObjectName('label1')
label2 = QLabel("Атомная станция")
label2.setObjectName('label2')
label2.setAlignment(Qt.AlignmentFlag(value=5))
label3 = QLabel("Год")
label3.setObjectName('label3')
label3.setAlignment(Qt.AlignmentFlag(value=5))
layout.addWidget(label1, 2, 0)
layout.addWidget(label2, 2, 1)
layout.addWidget(label3, 2, 2)

pdv = QLabel("С учетом корзины питания региона")
pdv.setObjectName('label8')
layout2.addWidget(pdv, 3, 0)

self.pdv = QLineEdit()
self.pdv.setObjectName('pdv')
self.pdv.setReadOnly(True)
layout2.addWidget(self.pdv, 3, 1)

unit3 = QLabel('Бк/м3')
unit3.setObjectName('label5')
layout2.addWidget(unit3, 0, 2)

self.c14 = QLineEdit()
self.c14.setObjectName('c14')
self.c14.setReadOnly(True)
layout2.addWidget(self.c14, 0, 1)

c14_name = QLabel('ОА С-14 в воздухе')
c14_name.setObjectName('label4')
layout2.addWidget(c14_name, 0, 0)

unit2 = QLabel('Мк3в/год')
unit2.setObjectName('label9')
layout2.addWidget(unit2, 3, 2)

widget1 = QWidget()
widget1.setLayout(layout)
widget1.setObjectName('head')

widget2 = QWidget()
widget2.setLayout(layout2)

main_layout.addWidget(widget1)
main_layout.addWidget(widget2)
mainWidget = QWidget()
mainWidget.setLayout(main_layout)

self.setCentralWidget(mainWidget)

def __rmc0_changed(self, i):
    process(rmc=i)
    try:
        mag, pdv, c14 = get_result()
        self.mag.setText(mag)
        self.pdv.setText(pdv)
        self.c14.setText(c14)
    except:
        pass

def __station_changed(self, s):
    process(staton=s)
    try:
        mag, pdv, c14 = get_result()
        self.mag.setText(mag)
        self.pdv.setText(pdv)
        self.c14.setText(c14)

```

```

except:
    pass

def __year_changed(self, year):
    process(year=year)
    try:
        mag, pdv, c14 = get_result()
        self.mag.setText(mag)
        self.pdv.setText(pdv)
        self.c14.setText(c14)
    except:
        pass

if __name__ == '__main__':
    with open('data/preprocess.json', 'w', encoding='utf-8') as file1, open('data/mag.json', 'w', encoding='utf-8'), open('data/pdv.json', 'w', encoding='utf-8'):
        json.dump({"rmc": 0, "station": 0, "year": 0}, file1)
    app = QApplication([])
    window = MainWindow()
    window.setObjectName("MainWindow")
    window.setStyleSheet(open("css/main.css").read())
    window.show()
    app.exec()

```

algorithm.py

```

import csv, json
from decimal import Decimal as D
import paramtrs

def right_format(string):
    e = string.index('e')
    if float(string) > 0:
        num1 = string[:5]
        if int(num1[-1]) >= 5:
            num1 = str(D(num1[:-1]) + D('0.01'))
        else:
            num1 = num1[:-1]
    else:
        num1 = string[1:6]
        if int(num1[-1]) >= 5:
            num1 = str(D(num1[:-1]) + D('0.01'))
        else:
            num1 = num1[:-1]
    string = num1 + string[e:]
    return string

def lets_go():
    with open('data/background.csv', encoding='utf-8') as backgr_file, open('data/preprocess.json', encoding='utf-8') as data_file:
        backgr = csv.DictReader(backgr_file, delimiter=';')
        data = json.load(data_file)
        st = data["station"]
        rmc, station, year = [value for value in data.values()]
        info = {}
        if rmc and station and year:
            rmc0 = D(rmc)
            rmc = D([row["PMC"] for row in backgr if row["Фон"] == year][0].replace(',', '.'))
            C14_air = (rmc0 - rmc) * D('2.27') * D(paramtrs.C12_air)
            magate = D(paramtrs.dcf) * C14_air / (D(paramtrs.C12_air) * 10**3)
            magate *= 10**6
            magate = round(magate, 2).__str__()
            mag = {}
            mag[st] = magate

            with open('data/consumption.json', encoding='utf-8') as consmp_file, open('data/food_fraction.json', encoding='utf-8') as fd_frFile, open('data/food.json', encoding='utf-8') as food_file:
                consmp_data = json.load(consmp_file)
                food_fr = json.load(fd_frFile)
                food = json.load(food_file)
                summ = 0
                for feed in food:
                    summ += D(consmp_data[st][feed]) * D(food_fr[st][feed]) / 100 * D(food[feed]) * C14_air / D(paramtrs.C12_air)
                summ *= D(paramtrs.Efood)
                summ += (D(paramtrs.Eing) * D(paramtrs.U) * C14_air)
                summ *= 10**6
                summ = round(summ, 2)
                summ = float(summ).__str__()
                info[st] = summ
            c14 = {"C14": float(round(C14_air, 2)).__str__()}

```



```

        with open('data/pdv.json', 'w', encoding='utf-8') as pdv_file, open('data/mag.json', 'w', encoding='utf-8') as mag_file, open('data/c14.json',
'w', encoding='utf-8') as c14_file:
            json.dump(info, pdv_file, ensure_ascii=False, indent=3)
            json.dump(mag, mag_file, ensure_ascii=False, indent=3)
            json.dump(c14, c14_file, ensure_ascii=False, indent=3)

```

getBackground.py

```

import csv

def get_year():
    with open('data/background.csv', encoding='utf-8') as year_file:
        text = csv.DictReader(year_file, delimiter=';')
        return [row["Φοη"] for row in text]

```

getResult.py

```

import json

def get_result():
    with open('data/mag.json', encoding='utf-8') as mag_file, open('data/pdv.json', encoding='utf-8') as pdv_file, open('data/c14.json',
encoding='utf-8') as c14:
        return list(json.load(mag_file).values())[0], list(json.load(pdv_file).values())[0], list(json.load(c14).values())[0]

```

params.py

```

dcf = '0.000056'
C12_air = '0.00018'
Eing = '0.000000000000612'
U = '8100'
Efood = '0.00000000058'
rmc0 = '120'
FR = '0.0000001'

```

processing.py

```

import json
from algorithm import lets_go

def process(rmc=None, staton=None, year=None):
    with open('data/preprocess.json', encoding='utf-8') as read_file:
        text = json.load(read_file)
        data = text
    if rmc:
        try:
            num = float(rmc)
            data["rmc"] = rmc
        except:
            pass
    elif staton:
        data["station"] = staton
    elif year:
        data["year"] = year
    with open('data/preprocess.json', 'w', encoding='utf-8') as write_file:
        json.dump(data, write_file, ensure_ascii=False)
    lets_go()

```

main.css

```

* {
    font-size: 15px;
}

.MainWindow {
    border-image: url("image/background.jpg");
}

.QComboBox,
.QLineEdit {
    border-radius: 8px;
    border: 2px solid black;
}

.QComboBox::drop-down {
    border-image: url("image/arrow.png");
    height: 15px;
    margin-top: 4px;
    width: 16px;
    margin-right: 5px;
}

#rmc0,

```

```

#station,
#year {
  min-width: 200px;
  max-width: 200px;
}

#label1,
#label2,
#label3,
#label4,
#label5,
#label6,
#label7,
#label8,
#label9 {
  border: 2px solid black;
  background-color: rgba(0, 102, 224, 90%);
  border-radius: 8px;
}

#label1 {
  max-height: 40px;
  max-width: 150px;
  margin-left: 25px;
}

#label2 {
  max-height: 40px;
  max-width: 150px;
  margin-left: 28px;
  padding-top: 8px;
}

#label3 {
  max-height: 40px;
  max-width: 80px;
  margin-left: 60px;
  padding-top: 8px;
  padding-right: 1px;
}

#head {
  max-height: 120px;
}

#mag,
#pdv,
#c14 {
  max-width: 100px;
  min-width: 100px;
}

#label4 {
  padding-left: 70px;
}

#label5 {
  padding-left: 14px;
  max-width: 73px;
}

#label6 {
  padding-left: 100px;
}

#label7 {
  max-width: 73px;
}

#label8 {
  max-width: 260px;
}

#label9 {
  max-width: 73px;
}

```

Приложение Б

Копия свидетельства о государственной регистрации программы для ЭВМ

РОССИЙСКАЯ ФЕДЕРАЦИЯ



СВИДЕТЕЛЬСТВО

о государственной регистрации программы для ЭВМ

№ 2023668701

**Программное обеспечение для ретроспективной оценки
годовых эффективных доз от выброса С-14**

Правообладатель: **ОБЩЕСТВО С ОГРАНИЧЕННОЙ
ОТВЕТСТВЕННОСТЬЮ "АГЕНТСТВО
ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ БЕЗОПАСНОСТИ "АЛЬФА-Х91"
(RU)**

Авторы: **Назаров Евгений Игоревич (RU), Екидин Артем
Алексеевич (RU)**

Заявка № **2023667963**

Дата поступления **31 августа 2023 г.**

Дата государственной регистрации

в Реестре программ для ЭВМ **31 августа 2023 г.**

*Руководитель Федеральной службы
по интеллектуальной собственности*

ДОКУМЕНТ ПОДПИСАН ЭЛЕКТРОННОЙ ПОДПИСЬЮ
Сертификат: 429b6a0fe3853164ba9f6f83673b4aa7
Владелец **Зубов Юрий Сергеевич**
Действителен с 10.03.2023 по 02.08.2024

Ю.С. Зубов

