

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого
Президента России Б. Н. Ельцина»

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

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Екатеринбург – 2023

Работа выполнена на кафедре экспериментальной физики Физико-технологического института в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина».

Научный руководитель: доктор физико-математических наук,
профессор,
Кружалов Александр Васильевич

Официальные оппоненты:

Барбин Николай Михайлович, доктор технических наук, доцент, ФГБОУ ВО «Уральский институт Государственной противопожарной службы Министерства Российской Федерации по делам гражданской обороны, чрезвычайным ситуациям и ликвидации последствий стихийных бедствий», г. Екатеринбург, ведущий научный сотрудник научно-исследовательского отделения учебно-научного комплекса пожаротушения и проведения аварийно-спасательных работ;

Клочков Владимир Николаевич, доктор технических наук, доцент, ФГБУ «Государственный научный центр Российской Федерации – Федеральный медицинский биофизический центр имени А. И. Бурназяна», г. Москва, главный научный сотрудник лаборатории радиационной безопасности персонала отдела промышленной радиационной гигиены;

Уткин Сергей Сергеевич, доктор технических наук, ФГБУН Институт проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук, г. Москва, заведующий отделением анализа долгосрочных рисков в сфере обеспечения ядерной и радиационной безопасности.

Защита диссертации состоится «20» декабря 2023 г. в 14:00 ч на заседании диссертационного совета УрФУ 2.4.07.17 по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, 19, ауд. И-420 (зал Ученого совета).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина», <https://dissovet2.urfu.ru/mod/data/view.php?id=12&rid=5376>

Автореферат разослан «___» _____ 2023 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета



Ташлыков Олег Леонидович

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования и степень ее разработанности. В течение многих лет как в Советском Союзе, так и в Российской Федерации действовал ограниченный перечень радионуклидов, подлежащих контролю на объектах использования атомной энергии: инертные радиоактивные газы (суммарная активность изотопов аргона, криптона, ксенона) и радионуклиды ^{131}I , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{24}Na . Проведение радиационно-технических обследований источников выбросов радиоактивных веществ 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 выбросов радиоактивных веществ АЭС при нормальной эксплуатации. Анализ базы данных по выбросам АЭС Европы также показал, что одним из основных дозообразующих радионуклидов является ^{14}C , независимо от типа ядерного реактора. Международное агентство по атомной энергетике (МАГАТЭ) рекомендует контролировать не менее 29 радионуклидов, включая ^{14}C , для оценки воздействия на окружающую среду при производстве электроэнергии атомными электростанциями. 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.

Обязательный контроль ^{14}C в выбросах атомных электростанций России начался после 2015 г. Отсутствие инструментальных измерений выбросов ^{14}C ядерных реакторов и объектов использования атомной энергии (ОИАЭ) до 2015 г. не позволяет адекватно оценить активность ^{14}C , поступившую в окружающую среду, а также радиационное воздействие таких выбросов для окружающей среды и человека. Важно контролировать выброс радиоуглерода как в процессе нормальной эксплуатации, так и при выводе из эксплуатации ядерных реакторов. Особенно это актуально для реакторов с графитовым замедлителем, имеющих наибольший удельный показатель выброса (количество образующегося ^{14}C на единицу произведенной электроэнергии).

В процессе работы ядерного реактора радиоуглерод образуется в основном при нейтронной активации примесных атомов, присутствующих в топливе, конструкционных материалах, теплоносителе и замедлителе. Основные реакции образования: $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ с сечением для тепловых нейтронов 1,82 барн, $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ (0,24 барн), $^{13}\text{C}(d, p)^{14}\text{C}$ (10^{-3} барн). 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.). Для графито-водных реакторов радиоуглерод попадает в атмосферу главным образом в виде $^{14}\text{CO}_2$, тогда как для водо-водяных доля органического ^{14}C в выбросах может достигать 75–95 %. В связи с этим важно контролировать все химические соединения ^{14}C 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 может попасть в организм человека, замещая стабильный аналог – ^{12}C . Опасность накопления радиоуглерода обусловлена двумя факторами: во-первых, внутренним облучением в результате распада непосредственно в молекулах органических соединений, во-вторых, мутагенными нарушениями в клетках живых организмов, вследствие изменений химического состава молекул путем превращения атома ^{14}C в атом ^{14}N : $^{14}\text{C} \rightarrow ^{14}\text{N} + e^-$.

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 . 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 в форме различных химических соединений 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.

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

Для достижения этой цели решены следующие **задачи**:

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

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

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

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

Предмет исследования – активность ^{14}C в источниках выбросов 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 и 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 годичных кольцах древесной растительности на территории потенциального воздействия, выполненного методом УМС; учете метеорологических условий, формирующих загрязнение атмосферы; различных химических соединений ^{14}C .

3. Впервые выполнена ретроспективная оценка годовой эффективной дозы облучения населения от 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 соединений 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». Данный стенд 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 осуществлялся с помощью разработанного стенда методом барботажа – 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, добавляли 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.

Отбор проб древесных кернов осуществлялся с помощью бурава Пресслера. Разделение годичных колец выполнялось специалистами Института экологии растений и животных УрО РАН. Химическая подготовка образцов, которая включала выделение целлюлозы из годичных колец, сжигание на абсорбционно-каталитической установке и получение чистого графитоподобного углерода, проводилась специалистами Института катализа имени Г. К. Борескова СО РАН. Активность ^{14}C в образцах измеряли с помощью ускорительного масс-спектрометра ИЯФ СО РАН. Чувствительность метода УМС – 10^{-15} $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$, 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 форме органических и неорганических соединений. Доля регистрируемых органических соединений ^{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 соединений ^{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 от выброса радиоуглерода 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; подтверждается лабораторной и опытной апробацией разработанной технологии, свидетельствами об метрологической экспертизе применяемых методик (методов) измерений.

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.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертационной работы, сформулированы цель и задачи исследований, отражены теоретическая и практическая значимость, научная новизна полученных результатов, представлены положения, выносимые на защиту.

В первой главе диссертации приведены основные свойства углерода-14, механизмы образования, приборы и методы измерения. Более подробно рассмотрено образование ^{14}C в ядерных реакторах различного типа: основные реакции и химические формы. Проведен статистический анализ выбросов ^{14}C атомными станциями Европы. На основе аналитического обзора обоснована необходимость мониторинга ^{14}C в выбросах ОИАЭ в форме различных химических соединений.

Вторая глава

Радиоуглерод поступает в окружающую среду с выбросами ОИАЭ в виде различных химических соединений. Доля органического ^{14}C в выбросах сопоставима с долей неорганического. Учет всех химических соединений ^{14}C позволяет выполнить адекватную оценку дозовых нагрузок на население.

В данной главе диссертации описана разработка стенда, позволяющего проводить отбор органических и неорганических соединений ^{14}C . Работа стенда основана на принципе барботажа – пропусканием газовой смеси через барботеры с жидкостью (рис. 1а). Подключение устройства выполнялось к системе отбора газоаэрозольных проб на предприятии атомной отрасли. На входе стенда установлен аэрозольный фильтр для того, чтобы исключить влияние низкоэнергетических бета-активных аэрозолей на результат измерения проб. В качестве побудителя используется воздушный компрессор, расход воздуха при этом контролируется поплавковым флоумером. В первом барботере, заполненным 100 мл дистиллированной воды, улавливается НТО. $^{14}\text{CO}_2$ улавливается двумя барботерами, заполненными 100 мл 2,5М-раствора NaOH, эффективность улавливания каждого составляет около 90%. Реактор дожига окисляет ^{14}CO и органические соединения ^{14}C до $^{14}\text{CO}_2$, который в дальнейшем улавливается двумя барботерами с NaOH.

На рис. 1б в разрезе представлена общая схема засыпки шести различных слоев катализатора. Газовоздушная смесь подается через центральное отверстие из медного змеевика (указано красной стрелкой) и попадает в слой предварительного разогрева, состоящего из кварцевого песка (1–2 мм). Далее уже разогретый газ поступает на промышленный высокотемпературный катализатор $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ (550–700 °С), где дожигается основная масса реагентов. Над слоем промышленного катализатора находится макропористый оксид алюминия для лучшей передачи тепла от стенок реактора газу. Следом по ходу движения реагентов находится катализатор $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ для доокисления реагентов в умеренной температурной зоне (250–400 °С). Затем газ попадает в макропористый катализатор $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ для следующего этапа дожига. Заключительный выходной слой состоит из Pt/ Al_2O_3 катализатора для доокисления следовых количеств CO и H_2 в низкотемпературной области (100–250 °С). Откуда через смещенный относительно центра выход (указан синей стрелкой) газ поступает из реактора в теплообменный змеевик.

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 %.

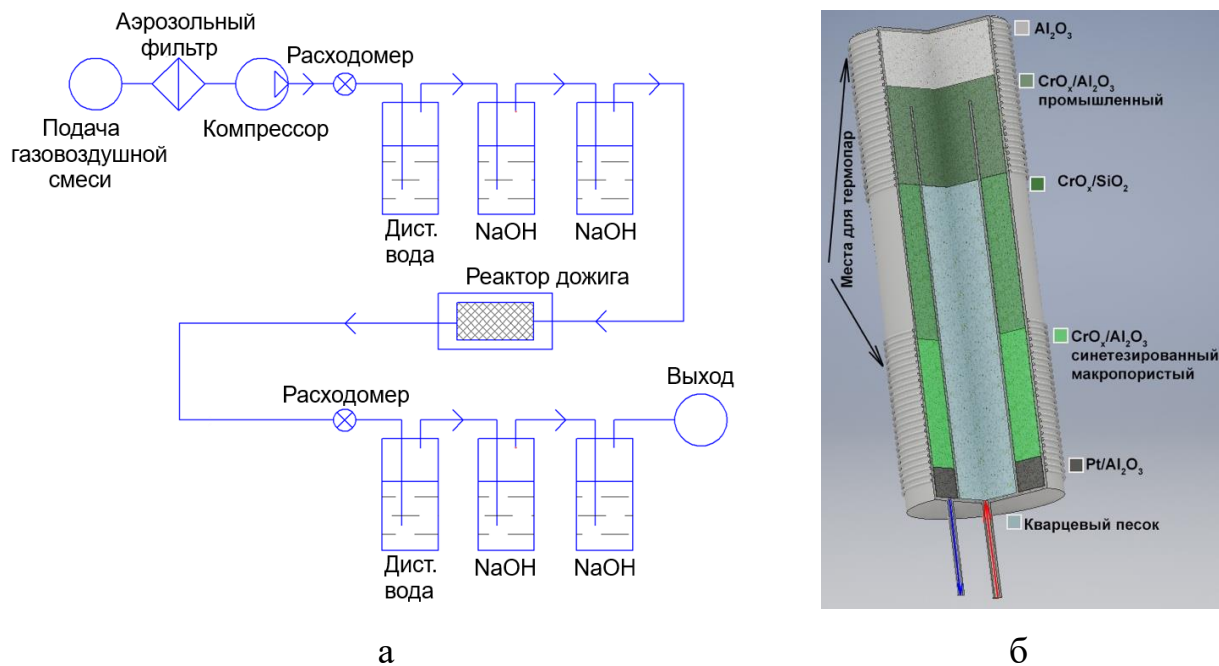


Рисунок 1 а – схема пробоотборного стенда, б – схема реактора дожига

С помощью разработанного стенда был выполнен отбор газообразного ^{14}C в выбросах АО «Институт реакторных материалов» г. Заречный, Свердловская область. На данном предприятии эксплуатируется исследовательский водо-водяной реактор «ИВВ-2М». Источниками образования ^{14}C в АО «ИРМ» являются:

- взаимодействие тепловых нейтронов с азотом-14, присутствующим в теплоносителе и замедлителе, а также в конструкционных материалах ядерного реактора: $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$;
- взаимодействие тепловых нейтронов и кислорода-18, присутствующего в теплоносителе и замедлителе, а также конструкционных материалах ядерного реактора: $^{18}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$;
- процесс обращения с изотопной продукцией ^{14}C , наработка которого осуществляется в активной зоне реактора;
- обращение с отработавшим ядерным топливом;
- тройное деление ядер топлива.

Результаты измерения объемной активности ^{14}C представлены на рис. 2. За период с ноября 2021 г. по март 2022 г. были исследованы выбросы ^{14}C из вентиляционной трубы предприятия. Всего было отобрано 8 проб (табл. 1): три с температурой реактора дожига 700 °С, три с 550 °С и две с 400 °С.

Таблица 1 – Данные по отбору проб ^{14}C в АО «ИРМ»

№	Даты отбора	Температура реактора, °С	Доля $^{14}\text{CO}_2$	Доля ^{14}CO , $^{14}\text{C}_{\text{орг}}$
1	25.02.2022 – 04.03.2022	400	0,59	0,41
2	04.03.2022 – 11.03.2022	400	0,70	0,30
3	11.11.2021 – 19.11.2021	550	0,69	0,31
4	22.11.2021 – 29.11.2021	550	0,62	0,38
5	21.01.2022 – 25.01.2022	550	0,21	0,79
6	02.02.2022 – 09.02.2022	700	0,62	0,38
7	10.02.2022 – 15.02.2022	700	0,16	0,84
8	16.02.2022 – 24.02.2022	700	0,40	0,60

Превышение объемной активности (ОА) органических соединений ^{14}C и ^{14}CO над $^{14}\text{CO}_2$ наблюдается в трех пробах из восьми. В остальных пробах органические соединения ^{14}C и ^{14}CO также вносят существенный вклад в ОА ^{14}C . Минимальная доля органического ^{14}C за время эксперимента составила 30%, максимальная – 84%. Различие в ОА ^{14}C при одной и той же температуре каталитической установки может быть связано с непостоянным составом газовоздушных выбросов, обусловленным различными режимами работы реактора, а также композицией активной зоны.

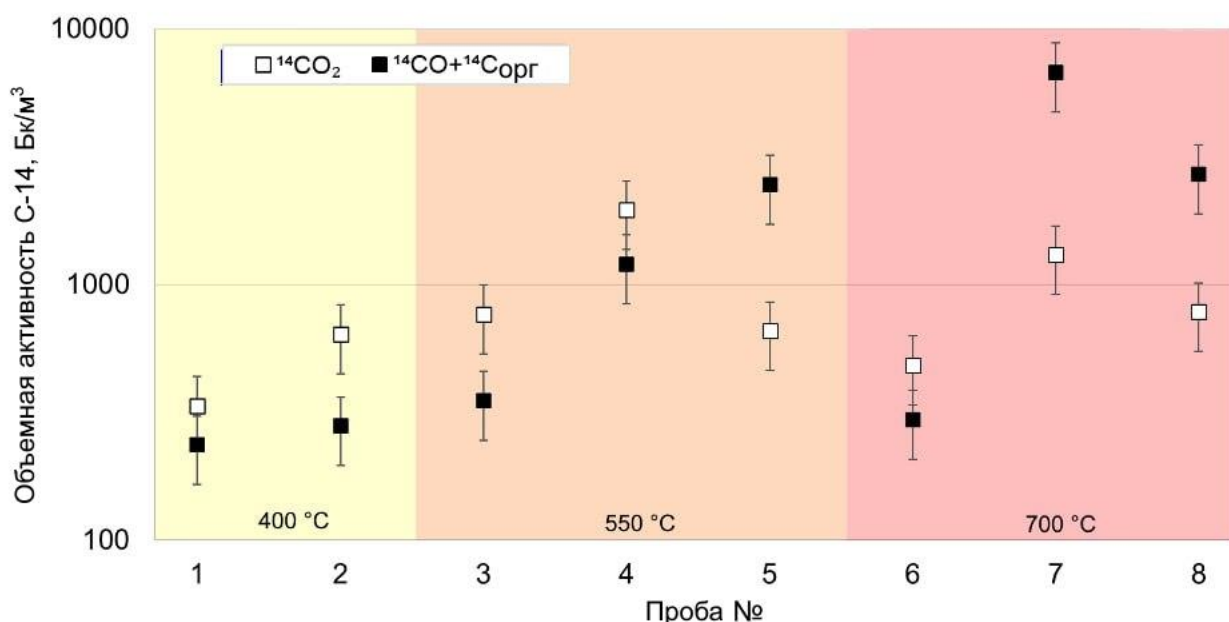


Рисунок 2 – Результаты измерения ОА ^{14}C в выбросах АО «ИРМ»

Подобные исследования с помощью разработанного стенда проводились в НИФХИ им. Л. Я. Карпова, г. Обнинск, Калужская область. Механизмы образования ^{14}C идентичны механизмам в АО «ИРМ», за исключением обращения с изотопной продукцией. Результаты измерения ОА неорганических и органических соединений ^{14}C в выбросах НИФХИ им. Л. Я. Карпова представлены в табл. 2. Температура каталитической установки составляла 550 °С.

Таблица 2 – Результаты измерения ОА ^{14}C в выбросах НИФХИ им. Л. Я. Карпова

Дата	ОА $^{14}\text{C}_{\text{неорг}}$, Бк/м ³	ОА $^{14}\text{C}_{\text{орг}}+^{14}\text{CO}$, Бк/м ³	Примечание
06.02.2023 – 07.02.2023	27±7	56±18	
07.02.2023 – 08.02.2023	<МДА		Останов реактора, отбор органических соединений не осуществлялся
08.02.2023 – 09.02.2023	<МДА		
09.02.2023 – 10.02.2023	16±5	8±3	
10.02.2023 – 11.02.2023	13±4	11±4	
11.02.2023 – 12.02.2023	15±5	11±4	
12.02.2023 – 13.02.2023	16±5	12±4	

Как видно из табл. 2, вклад органических соединений в ОА ^{14}C составляет от 33 до 68 %, что обуславливает необходимость мониторинга всех химических соединений ^{14}C в выбросах предприятий атомной отрасли. Неучет органических соединений ^{14}C может привести к неправильной оценке годовых эффективных доз, и, как следствие, заниженным нормативам предельно допустимых выбросов радиоуглерода для объектов использования атомной энергии.

Третья глава

Поскольку обязательный контроль ^{14}C в выбросах ОИАЭ в нашей стране осуществляется менее 10 лет, актуальной является задача ретроспективной оценки выброса радиоуглерода с момента начала работы предприятия атомной отрасли.

В данной главе предложен метод, позволяющий впервые выполнить ретроспективную оценку выброса ^{14}C на всем жизненном цикле предприятия атомной отрасли. В основе метода лежит анализ содержания радиоуглерода с помощью ускорительной масс-спектрометрии (УМС) в годичных кольцах деревьев, расположенных в непосредственной близости от источника выброса ^{14}C .

Растения поглощают $^{14}\text{CO}_2$ в процессе фотосинтеза. Фактическое соотношение изотопов радиоуглерода в окружающем воздухе сохраняется в органических веществах древесины. В отличие от других соединений (лигнин, смолы, воски и т. д.), целлюлоза не мигрирует в тканях дерева после формирования. Таким образом, в целлюлозе годичных колец сохраняются удельные активности ^{14}C , пропорциональные объемным активностям окружающего атмосферного ^{14}C (в виде $^{14}\text{CO}_2$)

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

- выбор источника поступления в окружающую среду;
- определение участка местности с наибольшим ожидаемым содержанием ^{14}C в древесной растительности, на основе метеоданных и фактора разбавления выбросов;
- отбор проб годовых колец с выбранного участка с помощью бурава Пресслера;
- измерение удельной активности ^{14}C в годовых кольцах методом УМС;
- расчет фактора разбавления, определяющего отношение среднегодовой объемной активности в приземном слое воздуха к среднегодовой мощности выброса в атмосферу;
- анализ результатов.

В настоящей диссертации выполнена ретроспективная оценка выброса Белоярской АЭС (АМБ-100, АМБ-200, БН-600, БН-800), АО «Институт реакторных материалов» (ИВВ-2М), Курская АЭС (РБМК-1000 4 ед.).

С участка местности с ожидаемым наибольшим содержанием ^{14}C в древесной растительности в результате выбросов АЭС с помощью бурава Пресслера были отобраны керны доминирующих видов древесной растительности, не менее 10 особей. Отобранные керны были разделены на годовые кольца, кольца одного возраста были объединены в одну пробу.

В ходе пробоподготовки из годовых колец химическим способом выделялась целлюлоза, которая затем подвергалась полному сжиганию и превращению в графитоподобный углерод на абсорбционно-каталитической установке, предназначенной для получения УМС-мишеней. Полученные мишени устанавливались в ускорительный масс-спектрометр, после чего проводились измерения концентрации ^{14}C .

Результаты измерения содержания ^{14}C в годовых кольцах представлены в табл. 3. В качестве фоновой использовали удельную активность ^{14}C в годовых кольцах 113-летней сосны, выросшей в Академгородке Новосибирска.

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

$$Q = \frac{A_V \cdot 3,15 \cdot 10^7}{K_f \cdot G_{n,i}}, \quad (1)$$

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. Коэффициент K_f был рассчитан при условии, что выброс ^{14}C осуществлялся в течение года непрерывно. Фотосинтез в районе Белоярской АЭС и АО «ИРМ» 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 $K_{f(Б\text{АЭС})} = 6/12 \cdot 16/24 = 0,33$. Фотосинтез в районе Курской АЭС 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 $K_{d(КуАЭС)}=7/12 \cdot 14,3/24=0,35$.

A_V – среднегодовая объемная активность ^{14}C в атмосферном воздухе на участке обора проб рассчитывалась по формуле:

$$A_V = \Delta A C_{cm}, \quad (2)$$

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

C_{cm} – концентрация стабильного углерода в воздухе, кг С/м³. C_{cm} рассчитывалась для каждого года с учетом концентрации CO_2 в атмосферном воздухе.

Таблица 3 – Результаты измерений УА ^{14}C в годичных кольцах деревьев

Год	Содержание ^{14}C , Бк/кг углерода		
	Белоярская АЭС и АО «ИРМ»	Курская АЭС	Фон
1970	364,1 ± 10,9	338,2 ± 10,5	337,1 ± 4,1
1976		330,7 ± 2,7	306,0 ± 3,0
1980	343,6 ± 34,5	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	297,3 ± 24,6	276,5 ± 1,5	260,7 ± 5,2
1993	281,0 ± 0,3		256,1 ± 3,0
1994	330,3 ± 7,4	265,2 ± 2,5	254,2 ± 5,1
1995	392,6 ± 48,6		253,1 ± 4,1
1998		255,8 ± 1,7	249,5 ± 3,4
2000	340,2 ± 6,9		242,0 ± 0,9
2002		255,1 ± 1,8	239,9 ± 4,8
2005	346,2 ± 12,8		236,1 ± 2,0
2006		267,5 ± 1,7	234,2 ± 2,7
2010	267,9 ± 8,0	244,4 ± 1,5	232,7 ± 2,1
2014		325,8 ± 13,1	231,1 ± 0,6
2015	267,2 ± 2,5		229,9 ± 0,9
2018		310,4 ± 6,2	228,5 ± 0,8
2020	293,7 ± 2,5	230,0 ± 1,7	227,0 ± 1,0

Используя значения среднегодового метеорологического фактора разбавления (ФР) для каждого из источников, можно оценить годовой выброс ^{14}C (рис. 3–4). Среднегодовой метеорологический ФР был получен с учетом многолетних метеорологических данных, регистрируемых на ближайшей к источнику выброса ^{14}C метеостанции. Для Белоярской АЭС и АО «ИРМ» использовали данные с метеостанции Верхнее Дуброво с 2006 г.,

для Курской АЭС были использован архив погоды в г. Курске с 2012 года. Для выбросов АО «ИРМ» сделана поправка на учет органических соединений радиоуглерода и ^{14}CO .

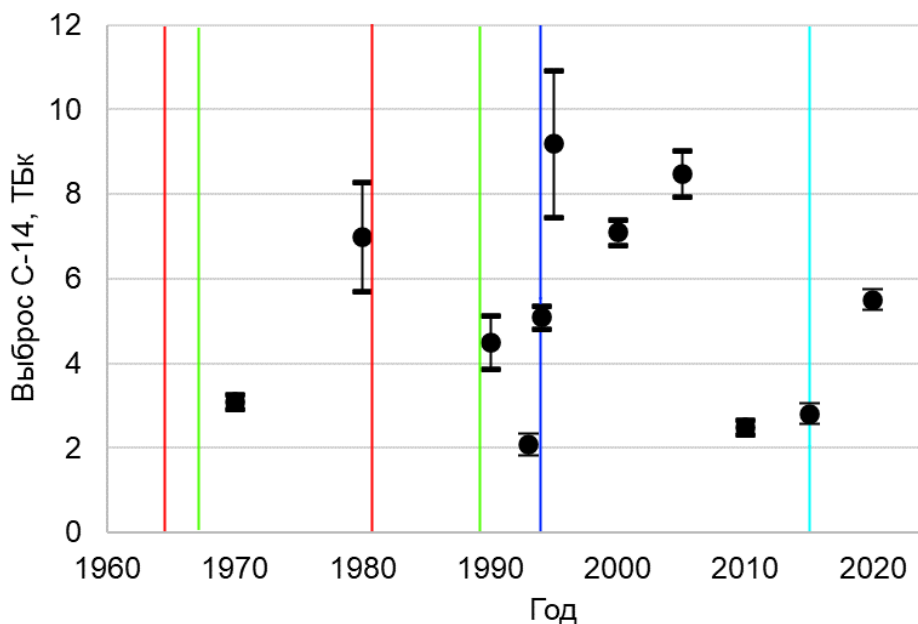


Рисунок 3 – Оценка годового выброса радиоуглерода Белоярской АЭС и АО «ИРМ». Эксплуатация АМБ-100 в 1964–1981 гг. (—), АМБ-200 в 1967–1989 гг. (—), наработка ^{14}C АО «ИРМ» с 1995 г. (—), БН-600 и БН-800 – с 1980 г. и с 2016 г. соответственно (—). Границами обозначен доверительный интервал

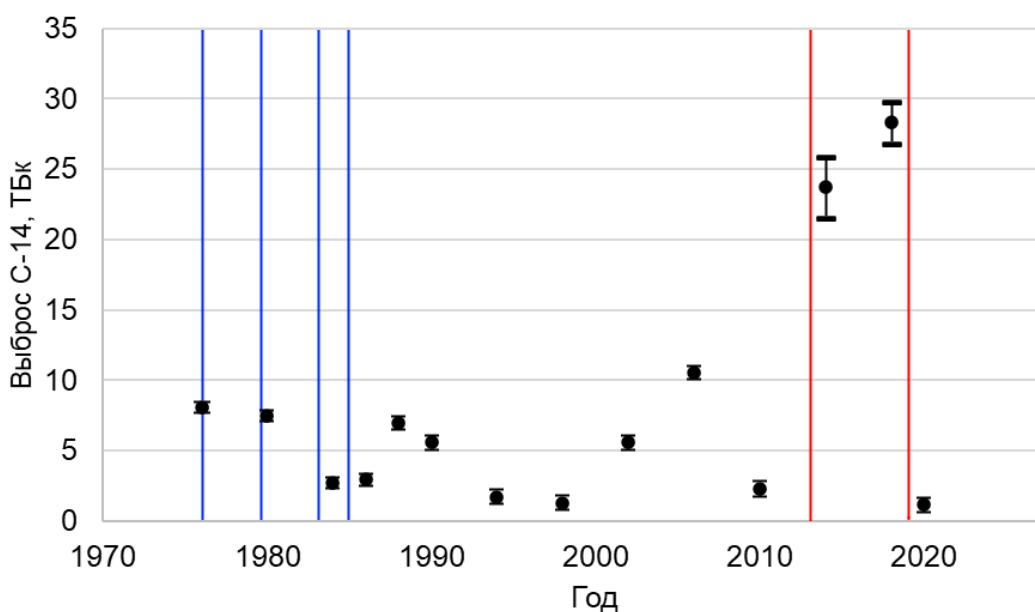


Рисунок 4 – Оценка годового выброса радиоуглерода Курской АЭС. Запуск 1–4 энергоблоков Курской АЭС: 1976, 1979, 1983, 1985 г. (—), восстановление графитовой кладки реакторов: 2013–2019 гг. (—)

На рис. 3 показано, что выброс ^{14}C в период с 1970 по 1990 гг. главным образом обусловлен эксплуатацией графито-водных ядерных реакторов АМБ-100 и АМБ-200. Ввод в эксплуатацию реакторов БН-600 и БН-800 на быстрых нейтронах незначительно повлиял на выброс ^{14}C , поскольку, в отличие от графито-водных, 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. 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.

Из рис. 4 видно, что при штатной эксплуатации Курской АЭС величина годового выброса ^{14}C колеблется от 1,2 до 10,5 ТБк. Однако при проведении работ по восстановлению графитовой кладки, большая часть ^{14}C , находившегося в порах графита, высвобождается и выбрасывается в атмосферу. Это подтверждает рост величины выброса ^{14}C в 2014 и 2018 г. – 23,7 и 28,3 ТБк соответственно. В связи с этим, в будущем необходимо уделять особое внимание контролю выброса ^{14}C при выведении из эксплуатации реакторов с графитовым замедлителем.

Четвертая глава

Ретроспективная оценка годового выброса ^{14}C ОИАЭ позволяет впервые выполнить расчет годовых эффективных доз на всем жизненном цикле предприятия: с момента пуска до вывода из эксплуатации.

В данной главе диссертации представлены ретроспективные оценки годовых эффективных доз в результате выброса ^{14}C предприятиями атомной отрасли. При расчетах предполагалось, что концентрация ^{14}C в годичном кольце дерева соответствует средней концентрации ^{14}C в окружающем атмосферном воздухе за определенный год. Техногенную составляющую ^{14}C рассчитывали, как разницу между измеренной и фоновой концентрацией (табл. 3).

На сегодняшний день МАГАТЭ рекомендует для оценки годовой эффективной дозы от поступления ^{14}C использовать следующую формулу:

$$D = A_V DCF / C_{cm}, \quad (3)$$

где $DCF = 5,6 \cdot 10^{-5}$ (Зв/год)/(Бк/г) – фактор конверсии, связывающий годовую дозу внутреннего облучения с его концентрацией в тканях человека в расчете на 1 г стабильного углерода.

Недостатком данного подхода является то, что рацион питания в нем состоит только из местных продуктов и, как следствие, наблюдается равновесие удельной активности ^{14}C в тканях человека, продуктах питания и атмосферном воздухе. Однако доля местной продукции не всегда превышает долю привозной, поэтому равновесия может и не наблюдаться. Для этого случая ожидаемая годовая эффективная доза может быть оценена по формуле:

$$D = \varepsilon_{\text{инг}} U A_V + \varepsilon_{\text{пищ}} \sum_i \alpha_i R_i A_{\text{пищ},i}, \quad (4)$$

где $\varepsilon_{\text{инг}}$ – коэффициент дозового преобразования при ингаляции ^{14}C , для взрослого человека при ингаляции ^{14}C в форме CO_2 он равен $6,2 \cdot 10^{-12}$ Зв/Бк;

$U = 8,1 \cdot 10^3$ м³/год – интенсивность дыхания взрослого человека;

$\varepsilon_{\text{пищ}} = 5,8 \cdot 10^{-10}$ Зв/Бк – коэффициент дозового преобразования при пищевом поступлении ^{14}C для взрослого человека;

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

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

$A_{\text{пищ},i}$ – удельная активность ^{14}C в i -м продукте питания местного производства, Бк/кг.

Удельная активность ^{14}C в i -м продукте питания, исходя из равновесия ^{14}C между атмосферным воздухом и местной растительной или животной продукцией, рассчитывается по формуле:

$$A_{\text{пищ},i} = A_V f_{p,i} / C_{ст}, \quad (5)$$

где $f_{p,i}$ – доля углерода в i -й растительной или животной продукции, кг С/кг продукции.

Результаты расчета годовых эффективных доз представлены в табл. 4, также была выполнена оценка годовой эффективной дозы от природного радиоуглерода по методологии МАГАТЭ.

Таблица 4 – Результаты расчета годовых эффективных доз от облучения ^{14}C

Год	Годовая эффективная доза, мкЗв				
	Подход МАГАТЭ			Неконсервативный подход	
	Курская АЭС	БАЭС и АО «ИРМ»	Природный ^{14}C	Курская АЭС	БАЭС и АО «ИРМ»
1	2	3	4	5	6
1970		4,7	18,9		1,6
1976	4,0		17,1	1,9	
1980	3,0	9,6	16,1	1,5	3,3
1984	1,2		15,9	0,6	
1986	1,4		15,5	0,7	
1988	3,2		14,6	1,6	
1990	2,5	6,2	14,6	1,2	2,1
1993		4,3	14,3		1,5
1994	1,6	12,8	14,3	0,8	4,4
1995		23,7	14,2		8,2
1998	1,0		14,0	0,5	
2000		16,7	13,6		5,8

Продолжение табл. 4

1	2	3	4	5	6
2002	1,1		13,4	0,5	
2005		18,7	13,2		6,4
2006	5,3		13,2	2,6	
2010	1,9	6,0	13,0	0,9	2,1
2014	15,1		12,9	7,4	
2015		6,4	12,8		2,2
2018	13,1		12,8	6,4	
2020	0,5	11,3	12,7	0,2	3,9

Из табл. 4 видно, что при использовании подхода, учитывающего корзину питания региона, годовая эффективная доза от техногенного ^{14}C не превышает минимально значимую дозу 10 мкЗв/год. При использовании такого подхода, значения годовых эффективных доз в 2–3 раза ниже, чем при использовании методологии МАГАТЭ. Обычно вклад природного радиоуглерода в дозовые нагрузки выше, чем вклад техногенного.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

В диссертации представлены результаты разработки и апробации специального мобильного стенда, который позволяет производить отбор проб ^{14}C в форме различных химических соединений ($^{14}\text{CO}_2$, ^{14}CO и $^{14}\text{C}_{\text{орг}}$) в газоаэрозольных выбросах предприятий атомной отрасли. Описан метод ретроспективной оценки выброса ^{14}C предприятиями атомной отрасли. Метод основан на УМС-анализе годичных колец деревьев, произрастающих на территории воздействия источника выброса. Выполнена ретроспективная оценка годовых эффективных доз в результате выбросов ^{14}C объектами использования атомной энергии. На основании проведенных экспериментальных и теоретических исследований можно сделать следующие выводы:

1. 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 ЖСС 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 на население необходимо учитывать все химические соединения ^{14}C в выбросах ОИАЭ.

2. Предложенный метод ретроспективной оценки выброса ^{14}C предприятиями атомной отрасли основан на УМС-анализе годичных колец деревьев, произрастающих в районе расположения этих предприятий. Метод УМС позволил оценить техногенный вклад в удельную активность ^{14}C в каждом годичном кольце и с помощью метеорологического

фактора разбавления были определены значения годовых выбросов радиоуглерода Курской АЭС, Белоярской АЭС и АО «ИРМ».

3. 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.

4. Ретроспективная оценка годовых эффективных доз облучения населения 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 разработки темы. Результаты диссертационной работы могут быть использованы для совершенствования системы радиационной безопасности на предприятиях атомной отрасли с точки зрения воздействия радиоуглерода. Результаты также могут быть учтены при разработке нормативов предельно допустимых выбросов на АЭС России, а также при проведении мероприятий при выводе из эксплуатации ядерных реакторов с графитовым замедлителем. Дальнейшей перспективой развития темы диссертационного исследования является изучение состава выбросов ^{14}C от ядерных энергетических реакторов типа ВВЭР и РБМК, выполнение ретроспективной оценки выброса радиоуглерода от эксплуатации Ленинградской АЭС с реакторными установками типа РБМК и ВВЭР, Билибинской АЭС (ЭГП-6) и др.

СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК РФ и Аттестационным советом УрФУ

1. 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(732). – С. 67–73. 0,8 п.л. / 0,4 п.л.

2. Nazarov, E. I. Instruments and Methods for Measuring ^{14}C (a Review) / **E. I. Nazarov**, A. V. Kruzhalov, A. A. Ekidin et al. // Instruments and Experimental Techniques. – 2021. – Vol. 64, № 6. – P. 790–795. 0,9 п.л. / 0,5 п.л. (Scopus, Web of Science)

3. Nazarov, E. I. ^{14}C in Tree Rings in the Vicinity of the Nuclear Facility Deployment Areas / **E. I. Nazarov**, A. V. Kruzhalov, A. A. Ekidin et al. // Izvestiya Vysshikh Uchebnykh Zawedeniy, Yadernaya Energetika. – 2022. – Vol. 1. – P. 107–117. 0,9 п.л. / 0,5 п.л. (Scopus)

4. Nazarov, E. I. Appraisal Method for the Population Radiation Dose from C-14 Emissions of Nuclear Enterprises/ **E. I. Nazarov**, A. V. Kruzhalov, A. A. Ekidin et al. // Atomic Energy. – 2023. – Vol. 132, №6. – P. 371–376. 0,8 п.л. / 0,5 п.л. (Scopus, Web of Science)

5. Nazarov, E. I. Organic and Inorganic Carbon-14 in Discharges of JSC Institute of Nuclear Materials / **E. I. Nazarov**, A. A. Ekinin, A. V. Kruzhalov et al // Nuclear Engineering and Technology. – 2023. – Vol. 55, №. 6. – P. 2107–2111. 0,7 п.л. / 0,4 п.л. (Scopus, Web of Science)

Патенты и свидетельства

6. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2023668701, 31.08.2023. Программное обеспечение для ретроспективной оценки годовых эффективных доз от выброса С-14 // Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ № 2023668701. 2023. Бюл. № / **Назаров Е. И.**, Екидин Ар. А.

Другие публикации

7. Nazarov, E. I. Radiological Assessment of the Belarusian Nuclear Power Plant Site in the Pre-operational Period / **E. I. Nazarov**, A. A. Ekinin, A. V. Vasiljev et al. // RAD Conference Proceedings. – 2020. – Vol. 4. – P. 142–148. (Scopus) 0,8 п.л / 0,2 п.л.

8. Nazarov, E. Tritium and Carbon-14 in Releases of Nuclear Reactor Facilities of Various Types / **E. Nazarov**, A. Ekinin, A. Vasilyev et al. // RAP Conference Proceedings. – 2019. – Vol. 4. – P. 47–52. 0,8 п.л / 0,4 п.л.

9. Назаров, Е. И. Анализ поступления углерода-14 в атмосферу в результате выбросов АЭС Европы / **Е. И. Назаров**, К. Л. Антонов, А. А. Екидин // Сборник тезисов, материалы Двадцать пятой Всероссийской научной конференции студентов-физиков и молодых ученых (ВНКСФ-25, Крым). – 2019. – С. 460. 0,1 п.л / 0,05 п.л.

10. Назаров, Е. И. Метод ретроспективной оценки дозы облучения населения в результате выбросов ¹⁴С предприятиями атомной отрасли / **Е. И. Назаров** // Хроническое радиационное воздействие: отдаленные медико-биологические эффекты: Материалы VII научной конференции с международным участием. – 2022. – С. 124. 0,1 п.л / 0,1 п.л.

11. Назаров, Е. И. Ретроспективная оценка радиационного воздействия углерода-14 в результате выбросов Курской АЭС / **Е. И. Назаров**, М. Е. Васянович // Ильинские чтения 2023: Сборник материалов международной научно-практической конференции молодых учёных и специалистов. – 2023. – С. 36–37. 0,1 п.л / 0,06 п.л.

Список сокращений

АЭС – атомная электростанция

МДА – минимальная детектируемая активность

РБМК – реактор большой мощности канальный

ОА – объемная активность

ОИАЭ – объект использования атомной энергии

СИ – средство измерения

УА – удельная активность

УМС – ускорительная масс-спектрометрия

ФР – фактор разбавления