

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ КОНЦЕПЦИИ НУКЛИДНОГО ВЕКТОРА ДЛЯ НОРМИРОВАНИЯ И КОНТРОЛЯ ВЫБРОСОВ РАДИОАКТИВНЫХ ВЕЩЕСТВ С АЭС

USING THE NUCLIDE VECTOR CONCEPT FOR NORMALIZATION AND CONTROL OF EMISSIONS OF RADIOACTIVE SUBSTANCES FROM NPP

A.-N. Vukolova
A. Rusinkevich
A. Dolgikh

Summary. In accordance with the Order of the Government of the Russian Federation No. 1316-p dated July 8, 2015, which established the "List of pollutants for which measures of state regulation in the field of environmental protection are applied" (hereinafter — the List of Governments) [1], it is necessary to standardize and control 94 radionuclides in atmospheric air.

Controlling NPP emissions of all 94 radionuclides is a difficult technical and organizational problem; therefore, a reasonable reduction in the number of controlled radionuclides remains an urgent task.

The purpose of the proposed article is to consider approaches that allow solving the set task.

Keywords: radionuclides, emissions, problem, rationing6 control..

Вуколова Ангелина-Наталья Валерьевна
Инженер, НИЦ «Курчатовский институт»
anvukolova@gmail.com

Русинкевич Андрей Александрович
Начальник лаборатории, НИЦ «Курчатовский институт»
nrcki@nrcki.ru

Долгих Александр Петрович
Инженер, НИЦ «Курчатовский институт»

Аннотация. В соответствии с Распоряжением Правительства Российской Федерации № 1316-р от 08 июля 2015 г., которое установило «Перечень загрязняющих веществ, в отношении которых применяются меры государственного регулирования в области охраны окружающей среды» (далее — Перечень Правительства) [1], необходимо нормировать и контролировать 94 радионуклида в атмосферном воздухе.

Контроль в выбросах АЭС всех 94 радионуклидов представляет сложную техническую и организационную проблему, поэтому актуальной задачей остается обоснованное сокращение числа контролируемых радионуклидов.

Целью предлагаемой статьи является рассмотрение подходов, позволяющих решить поставленную задачу.

Ключевые слова: радионуклиды, выбросы, проблема, нормирование6 контроль.

Одним из возможных подходов к решению данной задачи является анализ данных по активности радионуклидов в выбросах АЭС, представленных в базе данных Европейской комиссией по радиоактивным выбросам зарубежных АЭС советского дизайна [2]. Выбор исходных данных обусловлен полнотой представленной информации о качественном и количественном составе выбросов выбранных АЭС, основные сведения о которых представлены в таблице 1.

Предлагаемая статья состоит из трех этапов, на каждом из которых показана возможность сокращения числа нормируемых и контролируемых радионуклидов.

Этап 1 состоит из формирования перечня радионуклидов, зарегистрированных аппаратурой радиационного контроля выбросов на всех перечисленных АЭС (далее — Перечень 1).

В выбросах семи рассматриваемых АЭС советского дизайна, оборудованных реакторными установками

ВВЭР-440 и ВВЭР-1000, всего было зарегистрировано 63 радионуклида: ^{110m}Ag , ^{241}Am , ^{41}Ar , ^{76}As , ^{140}Ba , ^7Be , ^{14}C , ^{141}Ce , ^{144}Ce , ^{242}Cm , ^{243}Cm + ^{244}Cm , ^{57}Co , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{51}Cr , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{55}Fe , ^{59}Fe , ^3H , ^{181}Hf , ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I , ^{42}K , ^{85}Kr , ^{85m}Kr , ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{89}Kr , ^{140}La , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{99}Mo , ^{24}Na , ^{94}Nb , ^{95}Nb , ^{238}Pu , ^{239}Pu + ^{240}Pu , ^{106}Rh , ^{103}Ru , ^{106}Ru , ^{122}Sb , ^{124}Sb , ^{125}Sb , ^{46}Sc , ^{75}Se , ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{123m}Te , ^{132}Te , ^{131m}Xe , ^{133}Xe , ^{133m}Xe , ^{135}Xe , ^{135m}Xe , ^{137}Xe , ^{138}Xe , ^{65}Zn , ^{95}Zr .

Расхождения Перечня 1 с Перечнем Правительства обусловлено тем, что в реальных условиях в выбросе АЭС необязательно присутствуют все нуклиды из Перечня Правительства. Кроме того возможна ситуация, при которой активность некоторых радионуклидов мала и они не регистрируются.

Вопросы влияния величины наименьших пределов измерения использованной аппаратуры на перечень нормируемых и контролируемых радионуклидов выходят за рамки данной статьи, но будут рассмотрены в дальнейшем.

Таблица 1. Обобщённые данные о выбранных для анализа АЭС и их выбросах

АЭС	Тип РУ	Срок наблюдения, лет	Число регистрируемых нуклидов
Богунце (Словакия)	ВВЭР-440	13	40
Моховце (Словакия)	ВВЭР-440	13	41
Дукованы (Чехия)	ВВЭР-440	13	38
Пакш (Венгрия)	ВВЭР-440	13	38
Ловииса (Финляндия)	ВВЭР-440	22	36
Темелин (Чехия)	ВВЭР-1000	14	38
Козлодуй (Болгария)	ВВЭР-1000	13	42
Игналинская (Литва)	РБМК-1500	13	39

Выводы по этапу 1:

1. Список нормируемых и контролируемых радионуклидов сократился по сравнению с Перечнем Правительства с 94 до 63 радионуклидов.
2. В Перечень 1 вошли радионуклиды, которые могут контролироваться существующими техническими средствами.
3. В Перечень 1 вошли некоторые радионуклиды, которые отсутствуют в Перечне Правительства.

Этап 2 состоит из формирования перечня радионуклидов, создающих дозу равную 99% от дозы всех радионуклидов (далее — Перечень 99), зарегистрированных на АЭС.

Такая возможность предоставляется согласно РБ-106–15 [2].

На этом этапе используется нуклидный вектор (далее — НВ), т.к. в [3] представлены абсолютные величины активностей выбросов и такое представление затрудняет сравнение данных из-за разных величин выбросов по годам.

Нуклидный вектор по активности (q_{ij}) — это относительная величина активности каждого радионуклида, содержащегося в выбросе.

$$q_{ij} = \frac{A_{ij}}{\sum_{j=1}^N A_{ij}} \quad (1)$$

где q_{ij} — относительная активность i -нуклида в выбросе j -года;

A_{ij} — активность выброса i -нуклида за j -год [Бк/год];
 N — суммарное число нуклидов в выбросе.

$$\sum_{i=1}^N q_{ij} = 1 \quad (2)$$

На этапе 2 для каждой АЭС по каждому году наблюдения были:

- ♦ построены НВ по активности;
- ♦ для каждого радионуклида из НВ рассчитаны дозы облучения, создаваемые ими;

- ♦ проведена сортировка радионуклидов по убыванию дозы облучения, создаваемой ими;
- ♦ установлен перечень радионуклидов, суммарная доза которых превышает 99% от суммарной дозы всех радионуклидов, вошедших в НВ (Перечень 99).

На этапах 2 и 3 проводились расчеты доз облучения в следующих предположениях;

- ♦ расчеты ведутся для выбросов при нормальной эксплуатации АЭС;
- ♦ нормируемой величиной является индивидуальная эффективная доза представителя критической группы населения, равная сумме доз от всех радионуклидов по всем путям облучения за календарный год (суммарная доза);
- ♦ суммарная доза рассчитывается на основе данных об активности регистрируемых радионуклидов от выбросов из всех источников выброса на АЭС за календарный год;
- ♦ расчет ведется для АЭС как одного источника выброса радионуклидов;
- ♦ суммарная доза рассчитывается по методике [2] в предположении об отсутствии разбавления выброса в атмосфере.

В Перечень 2 вошли все радионуклиды, которые хотя бы один раз попали в Перечень 99 на любой АЭС за любой год наблюдения.

Всего в Перечень 2 вошло 20 следующих радионуклидов: ^{110m}Ag , ^{41}Ar , ^{14}C , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^3H , ^{181}Hf , ^{131}I , ^{85m}Kr , ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{124}Sb , ^{90}Sr , ^{75}Se , ^{133}Xe , ^{135}Xe , ^{106}Ru , ^{239}Pu + ^{240}Pu .

Если ввести виртуальный нуклид «Сумма ИРГ», то в Перечень 2 входят следующие нуклиды: Сумма ИРГ, ^{110m}Ag , ^{14}C , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^3H , ^{181}Hf , ^{131}I , ^{124}Sb , ^{90}Sr , ^{75}Se , ^{106}Ru , ^{239}Pu + ^{240}Pu .

Виртуальный нуклид «Сумма ИРГ» выделяется потому, что до настоящего времени одним из широко используемых показателей радиационной безопасности

Таблица 2. Относительный вклад в суммарную дозу отдельных радионуклидов, входящих в СНВ 99,%

АЭС	Ловииса	Богунце	Моховце	Пакш	Козлодуй	Темелин	Дукованы
^{14}C	87,23	75,08	94,47	74,54	96,26	87,73	95,4
^{60}Co	0,92	0,41	0,03	1,13	0,28		0,04
^{134}Cs	-	-	-	-	-	0,57	-
^{137}Cs	-	-	-	1,01	0,06	0,36	-
^3H	0,76	2,03	1,66	6,51	0,97	6,24	-
^{181}Hf	-	2,77	-	-	-	-	-
^{131}I	3,43	8,42	0,38	3,61	1,27	3,00	0,24
Сумма ИРГ	6,89	10,47	2,72	12,21	0,25	1,46	3,69
Сумма,%	99,23	99,18	99,26	99,01	99,09	99,36	99,37

АЭС является именно суммарная активности выбросов ИРГ, контроль которых имеет хорошо разработанное приборное и методическое обеспечение.

В данной работе при расчете дозы от виртуального нуклида «Сумма ИРГ» использовался на каждой АЭС свой радионуклидный вектор выбросов ИРГ.

Выводы по этапу 2:

1. Перечень 2 (Сумма ИРГ, $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{14}C , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^3H , ^{181}Hf , ^{131}I , ^{124}Sb , ^{90}Sr , ^{75}Se , ^{106}Ru , ^{239}Pu + ^{240}Pu .) является универсальным для всех рассмотренных АЭС.
2. В Перечень 2 вошли радионуклиды, которые дают основной вклад в суммарную дозу облучения при соблюдении условий эксплуатации АЭС, принятых до 2016 года.
3. Список нормируемых и контролируемых радионуклидов сократился по сравнению с Перечнем Правительства с 94 до 20 радионуклидов (с учетом виртуального радионуклида «Сумма ИРГ» — до 15).

На 3 этапе для каждой АЭС из таблицы 1:

- ◆ строится НВ, элементами которого являются активности радионуклидов, усредненные по годам наблюдения (средний НВ или далее — СНВ);
- ◆ для каждого радионуклида рассчитывается доза, создаваемая выбросом с относительной активностью, соответствующей СНВ;
- ◆ проводится сортировка радионуклидов по величине дозы, отбираются радионуклиды, дающие вклад в суммарную дозу более 99% от суммарной дозы всех регистрируемых радионуклидов, и таким образом определяется Перечень 3.

Радионуклиды, входящие в Перечень 3, образуют нуклидный вектор СНВ 99.

Перечень нуклидов, вошедших в СНВ 99 для АЭС российского дизайна ВВЭР-440 и ВВЭР-1000, представлен в таблице 2.

В Перечень 3 входят следующие радионуклиды: Сумма ИРГ, ^{14}C , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^3H , ^{181}Hf , ^{131}I .

Так как нормирование выбросов базируется на прогнозе суммарной дозы, далее на этапе 3 проводится анализ возможности прогнозирования суммарной дозы в отдельные годы с использованием СНВ 99.

Чтобы убедиться, что СНВ 99 может быть использован для прогнозирования суммарной дозы, для каждой АЭС проведены следующие расчеты.

Для каждого года наблюдения построены годовые нуклидные вектора, содержащие относительную активность всех радионуклидов, регистрируемых на данной АЭС. Используя построенные годовые НВ, рассчитаны значения суммарных доз по годам, которые считаются «истинными» (D_j).

Далее для каждой АЭС по СНВ 99 рассчитывается значение суммарной дозы (прогнозируемая доза, D_s).

В качестве количественной меры сравнения (P_j) для j года взято отношение

$$P_j = D_s/D_j \quad (3)$$

На рисунках 1–8 представлены значения P_j по годам для различных АЭС. Из 101 значения (сумма лет наблюдения на АЭС ВВЭР-440 и ВВЭР-1000) выявлено 2 случая, в которых P_j превосходит 2,0 (Богунце 2016 г. и Ловииса 1996 г.), и 11 случаев, в которых P_j меньше 0,5. Во всех остальных случаях (по всем годам и всем АЭС) P_j оставался в диапазоне 0,5÷2.

Рисунок 1. Критерий постоянства выбросов АЭС Богунце за период наблюдения

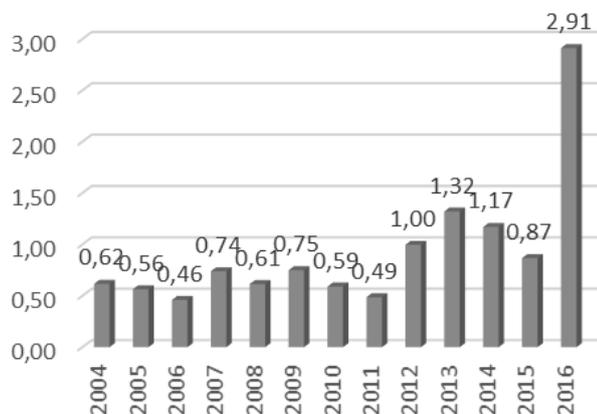


Рисунок 2. Критерий постоянства выбросов АЭС Моховце за период наблюдения

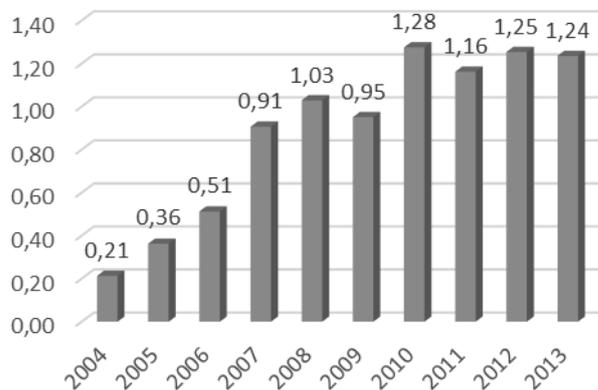


Рисунок 3. Критерий постоянства выбросов АЭС Дукованы за период наблюдения

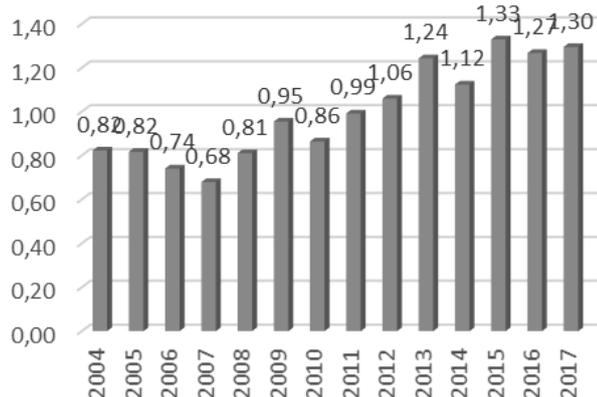


Рисунок 4. Критерий постоянства выбросов АЭС Темелин за период наблюдения

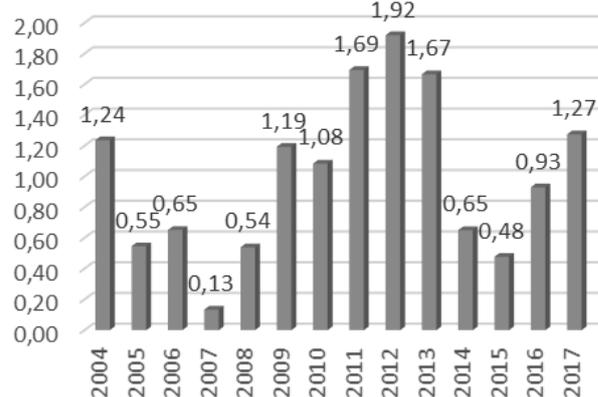


Рисунок 5. Критерий постоянства выбросов АЭС Ловиса за период наблюдения

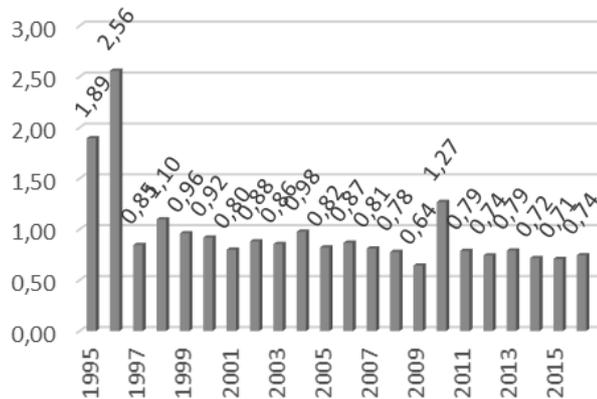


Рисунок 6. Критерий постоянства выбросов АЭС Темелин за период наблюдения

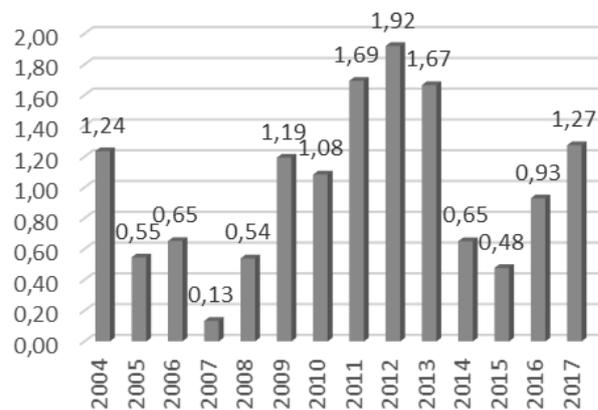


Рисунок 7. Критерий постоянства выбросов АЭС Козлодуй за период наблюдения

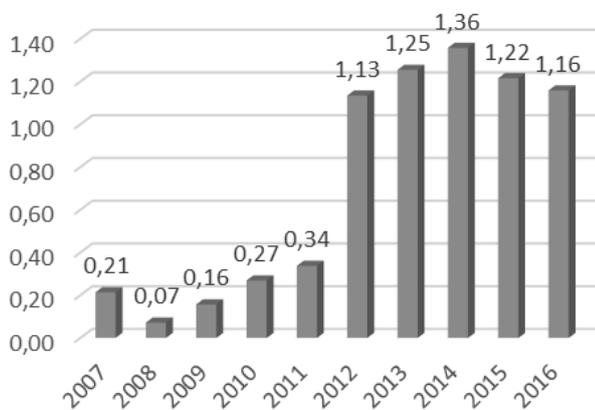
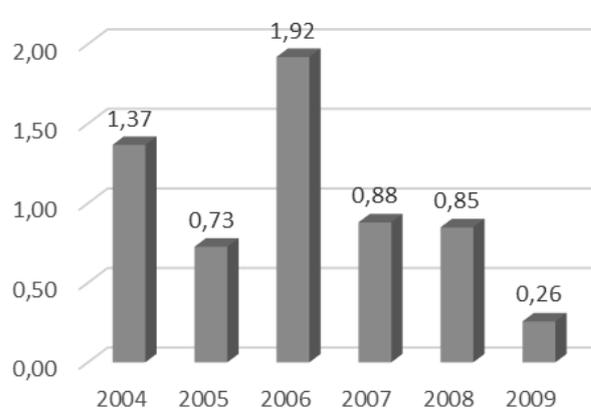


Рисунок 8. Критерий постоянства выбросов Игналинской АЭС за период наблюдения



Отсюда следует, что средний НВ может быть использован для прогнозирования суммарной дозы выбросов РВ на всех АЭС российского дизайна (таблица 1) с точностью до коэффициента 2. Так как реальные выбросы РВ АЭС составляют несколько процентов от допустимых выбросов, точность прогноза суммарной дозы до коэффициента 2 можно считать приемлемой.

Учитывая сделанные замечания, можно считать, что СНВ 99 является стабильным.

Стабильность нуклидного вектора в выбросах АЭС открывает возможность для упрощения процессов нормирования и контроля выбросов АЭС. Это упрощение связано с возможностью прогнозирования активности и дозы для любого радионуклида из НВ, а также суммарную дозу всех радионуклидов, если известна активность одного заданного радионуклида (реперного нуклида).

Если известны a_r — удельная активность r -нуклида (реперного нуклида), q_r, q_i — элементы нуклидного вектора, то можно определить a_i — удельную активность i -нуклида из НВ по следующей формуле:

$$a_i = a_r \times \frac{q_i}{q_r}, \quad (4)$$

Суммарная годовая эффективная доза облучения D_Σ определяется по формуле:

$$D_\Sigma = \sum_{i=1}^K C_i a_i = \frac{a_r}{q_r} \times \sum_{i=1}^K C_i q_i = \frac{a_r}{q_r} \times D_{q_r}, \quad (5)$$

где D_q — суммарная доза всех нуклидов НВ. Другими словами D_q — доза, создаваемая радионуклидами НВ при условии, что их суммарная активность равна 1 Бк/м³ (a_r и q_r имеют размерность [Бк/м³]);

C_i — коэффициент перевода удельной активности в дозу.

Таким образом, зная НВ и дозу реперного нуклида, можно рассчитать суммарную дозу от всех нуклидов, входящих в НВ, по методике [2].

Теоретически реперным радионуклидом может быть выбран любой нуклид, входящий в выброс заданной АЭС. Однако, в следствии того, что вклад в суммарную дозу отдельных нуклидов сильно различается (от десятков до десятых долей процента) и активность реальных выбросов не постоянна во времени, необходимо провести отбор реперных нуклидов. В данной работе все радионуклиды, входящие в СНВ 99 для всех АЭС, были проверены в качестве реперных.

Для исследования возможностей использования реперных нуклидов для каждой АЭС по НВ-99 и известным данным о реперных радионуклидах прогнозировалась суммарная годовая доза $D_\Sigma^{пр.}$ (далее — прогнозируемая доза), которая сравнивалась с истинной дозой $D_\Sigma^{ист.}$. Для определения реперного радионуклида среди возможных было вычислено отношение прогнозируемой по данному радионуклиду суммарной дозы к истинной суммарной дозе (Р). Для лучшего реперного радионуклида данное отношение должно быть близко к единице.

В качестве примера в таблице 3 приведены значения отношений прогнозируемой по реперному радионуклиду суммарной годовой дозы к истинной для АЭС Богунце. Наилучшие результаты прогнозирования дозы дают ¹⁴C и ³H в качестве реперных радионуклидов (Р лежит

Таблица 3. Отношение прогнозируемой по реперному радионуклиду суммарной годовой дозы к истинной $D_{\Sigma}^{пр.} / D_{\Sigma}^{ист.}$ для АЭС Богунце.

Реперный нуклид	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016
^3H	0,57	1,43	1,64	1,37	1,08	0,95	0,75	0,94	0,97	0,78	0,97	1,42	1,17
^{14}C	0,17	0,95	1,12	1,18	1,23	1,27	1,23	1,18	1,26	1,29	1,27	1,24	0,84
Сумма ИРГ	0,82	1,68	2,13	1,26	1,38	1,04	1,90	2,61	1,33	1,04	1,13	1,51	0,06
^{41}Ar	0,79	1,56	2,01	1,31	1,22	0,91	1,91	2,73	1,45	1,16	1,24	1,65	0,00
^{60}Co	1,14	5,65	2,43	2,91	2,91	1,58	0,69	1,25	0,30	0,13	0,18	0,30	0,30
^{131}I	16,01	3,40	0,87	0,82	0,24	0,10	0,02	0,02	0,01	0,01	0,01	0,01	0,00
^{181}Hf	_*	_*	_*	_*	_*	_*	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	2,40

*Символ (-) обозначает, что в выбранный год измерения активности данного реперного радионуклида не проводились.



Рисунок 11. Результаты прогнозирования суммарной годовой эффективной дозы по ^{14}C , ^3H и сумме ИРГ в качестве реперных радионуклидов. АЭС Дукованы

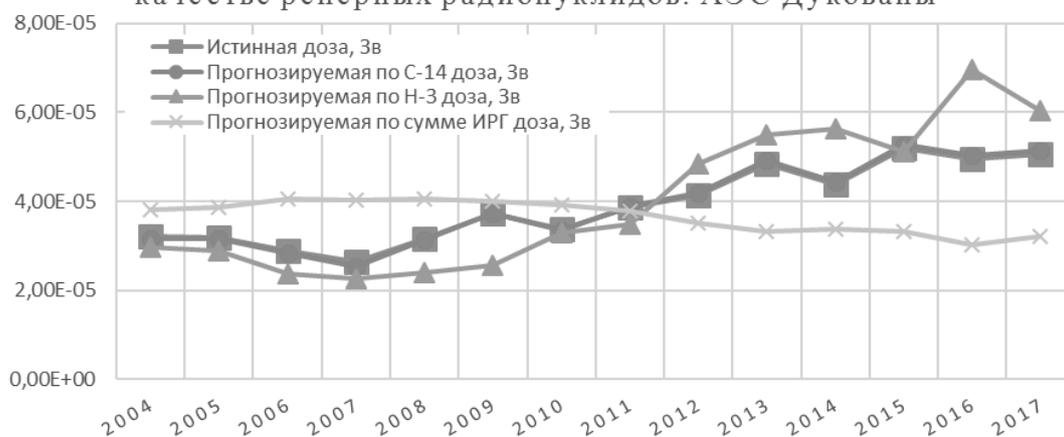


Рисунок 12. Результаты прогнозирования суммарной годовой эффективной дозы по ^{14}C , ^3H и сумме ИРГ в качестве реперных радионуклидов. АЭС Пакш



Рисунок 13. Результаты прогнозирования суммарной годовой эффективной дозы по ^{14}C , ^3H и Сумме ИРГ в качестве реперных радионуклидов. АЭС Ловиша





в диапазоне 0,5÷2). Кроме того, хорошие результаты прогнозирования дозы продемонстрировал виртуальный нуклид — сумма ИРГ. Аналогичные результаты получены для других АЭС из списка 1, кроме Игналинской АЭС. Для нее лучший результат получен для ^{131}I , прогнозирование дозы по ^{14}C и ^3H в качестве реперных радионуклидов оказывается невозможным, т.к. измерения активности ^{14}C и ^3H в выбросе в период с 2004 года по 2007 год не проводились.

Аналогичные результаты прогнозирования по ^{14}C , ^3H и сумме ИРГ в качестве реперных радионуклидов были получены для каждой из рассматриваемых АЭС из таблицы 1. Результаты прогнозирования суммарной годовой эффективной дозы по ^{14}C , ^3H и сумме ИРГ в качестве реперных радионуклидов представлены на рисунках 9–15.

На рисунке 16 показаны результаты прогнозирования годовой эффективной дозы для Игналинской АЭС по ^{131}I в качестве реперного радионуклида.

Таким образом, выделены реперные нуклиды для газоаэрозольных выбросов рассматриваемых АЭС:

- ◆ для АЭС с энергоблоками ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 лучшими реперными радионуклидами являются ^{14}C , ^3H и сумма ИРГ;
- ◆ для Игналинской АЭС, оборудованной энергоблоком РБМК-1500, в период нормальной эксплуатации лучшим реперным радионуклидом является ^{131}I .

Выводы

1. Получен Перечень 1, в который вошли все нормируемые и контролируемые в течение периода на-

блюдения радионуклиды, зарегистрированные в выбросах АЭС, представленных в таблице 1.

В Перечень 1 вошли радионуклиды, которые могут контролироваться существующими техническими средствами.

По сравнению с Перечнем Правительства, который содержит 94 радионуклида, Перечень 1 содержит 63 радионуклида. Однако в Перечень 1 вошли некоторые радионуклиды, которые отсутствуют в Перечне Правительства.

2. Получен Перечень 2, в который вошли радионуклиды, дающие основной вклад в суммарную дозу облучения при соблюдении условий эксплуатации АЭС, принятых до 2016 года.

Перечень 2 (Сумма ИРГ, $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{14}C , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^3H , ^{181}Hf , ^{131}I , ^{124}Sb , ^{90}Sr , ^{75}Se , ^{106}Ru , ^{239}Pu + ^{240}Pu .) является универсальным для всех рассмотренных АЭС.

3. Используя полученный Перечень 2, список нормируемых и контролируемых радионуклидов возможно сократить по сравнению с Перечнем Правительства с 94 до 20 радионуклидов (с учетом виртуального радионуклида «Сумма ИРГ» — до 15).
4. Выделены реперные нуклиды для газоаэрозольных выбросов рассматриваемых АЭС:
 - ◆ для АЭС с энергоблоками ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 лучшими реперными радионуклидами являются ^{14}C , ^3H и сумма ИРГ;
 - ◆ для Игналинской АЭС, оборудованной энергоблоком РБМК-1500, в период нормальной эксплуатации лучшим реперным радионуклидом является ^{131}I .

ЛИТЕРАТУРА

1. Распоряжение Правительства РФ от 8 июля 2015 г. N1316-р Об утверждении перечня загрязняющих веществ, в отношении которых применяются меры государственного регулирования в области охраны окружающей среды
2. РБ-106–15 Руководство по безопасности при использовании атомной энергии «Рекомендуемые методы расчета параметров, необходимых для разработки и установления нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферный воздух»
3. RADD, the European Commission RAdioactive Discharges Database

© Вуколова Ангелина-Наталья Валерьевна (anvukolova@gmail.com),
 Русинкевич Андрей Александрович (nrcki@nrcki.ru), Долгих Александр Петрович.
 Журнал «Современная наука: актуальные проблемы теории и практики»