

УДК 574:539.1.04:614.73

## ИДЕНТИФИКАЦИЯ ОСНОВНЫХ ДОЗОБРАЗУЮЩИХ РАДИОНУКЛИДОВ В ВЫБРОСАХ АЭС

Екидин А.А., Жуковский М.В. (Ин-т промышленной экологии УрО РАН, г. Екатеринбург),  
Васянович М.Е. (Уральский федеральный ун-т, г. Екатеринбург)

Для оценки радиационного воздействия на человека и окружающую среду необходимо учитывать основные дозобразующие радионуклиды [1]. В настоящее время они не установлены. Одна из причин невозможности их выбора — ограниченное число контролируемых радионуклидов в выбросах АЭС. В нашей стране контролируются выбросы семи радионуклидов:  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{58,60}\text{Co}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{131}\text{I}$ , суммарная  $\beta$ -активность и суммарный выброс инертных радиоактивных газов [2].

В европейских странах создана электронная база данных о радиоактивных выбросах и сбросах АЭС с разными типами реакторов [3]. В выбросах европейских АЭС контролируются содержание 101 радионуклида и четыре суммарных показателя —  $\beta$ -,  $\alpha$ -активность, инертные радиоактивные газы и изотопы иода (табл. 1). Анализ этих данных позволяет оценить вклад каждого радионуклида в формирование дозы и сформулировать перечень радионуклидов для каждого типа реактора, определяющий 95%-ный

вклад в эффективную дозу населения. В настоящей статье приведены результаты ранжирования радионуклидов в выбросах европейских АЭС по их вкладу в облучение населения.

Вклад контролируемых радионуклидов оценен для пяти наиболее распространенных типов реакторов АЭС: водо-водяные энергетические PWR, кипящие BWR, усовершенствованные газоохлаждаемые AGR, большой мощности канальный LWGR и тяжеловодный CANDU. Условия формирования облучения — рельеф, половозрастная структура и рацион питания населения в зоне воздействия выбросов, метеорологические условия разбавления приняты одинаковыми. Эффективная высота выброса в расчете составляла 120 м. Активность радионуклидов, поступивших в атмосферу, усредняли за 10 лет наблюдения на АЭС и приводили к числу реакторов в выборке. Таким образом была получена среднегодовая активность выброса каждого радионуклида для одного реактора.

Для оценки дозовых нагрузок на население были сформированы пять выборок для выбросов пяти типов реакторов за последние 10 лет эксплуатации: 19 АЭС с PWR Франции, три АЭС с BWR Швеции, восемь АЭС с AGR Великобритании, одна АЭС с LWGR Литвы, одна АЭС с CANDU Румынии. Каждая выборка включала радионуклиды, которые контролируются не менее чем на 50% АЭС (табл. 2).

Т а б л и ц а 1. Контролируемые параметры  
в выбросах европейских АЭС

| Страна         | Число АЭС | Число контролируемых параметров (активность отдельных нуклидов или суммарная активность группы нуклидов) |
|----------------|-----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Бельгия        | 2         | 4                                                                                                        |
| Болгария       | 1         | 49                                                                                                       |
| Великобритания | 9         | 11                                                                                                       |
| Венгрия        | 1         | 42                                                                                                       |
| Германия       | 8         | 41                                                                                                       |
| Испания        | 5         | 54                                                                                                       |
| Нидерланды     | 1         | 16                                                                                                       |
| Румыния        | 1         | 31                                                                                                       |
| Словакия       | 2         | 48                                                                                                       |
| Словения       | 1         | 34                                                                                                       |
| Финляндия      | 2         | 42                                                                                                       |
| Франция        | 20        | 43                                                                                                       |
| Чехия          | 2         | 40                                                                                                       |
| Швеция         | 4         | 93                                                                                                       |

Т а б л и ц а 2. Контролируемые радионуклиды  
в выбросах на половине и более европейских АЭС

| Радионуклид                                                                                                                                                                                   | Доля АЭС, % |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------|
| $^3\text{H}$                                                                                                                                                                                  | 100         |
| $^{14}\text{C}$ , $^{131}\text{I}$                                                                                                                                                            | 93          |
| $^{41}\text{Ar}$ , $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{133}\text{Xe}$                                                                                                                   | 86          |
| $^{58}\text{Co}$ , $^{51}\text{Cr}$ , $^{134}\text{Cs}$ , $^{59}\text{Fe}$ , $^{85}\text{Kr}$ , $^{88}\text{Kr}$ , $^{54}\text{Mn}$ , $^{95}\text{Nb}$ , $^{135}\text{Xe}$ , $^{95}\text{Zr}$ | 79          |
| $^{85m}\text{Kr}$ , $^{87}\text{Kr}$ , $^{124}\text{Sb}$ , $^{90}\text{Sr}$                                                                                                                   | 71          |
| $^{110m}\text{Ag}$ , $^{141}\text{Ce}$ , $^{144}\text{Ce}$ , $^{133}\text{I}$ , $^{103}\text{Ru}$ , $^{125}\text{Sb}$ , $^{133m}\text{Xe}$ , $^{135m}\text{Xe}$                               | 64          |
| $^{140}\text{Ba}$ , $^{89}\text{Sr}$ , $^{131m}\text{Xe}$ , $^{138}\text{Xe}$ , $^{65}\text{Zn}$                                                                                              | 57          |
| $^{57}\text{Co}$ , $^{132}\text{I}$                                                                                                                                                           | 50          |

Эффективную дозу на население определяли с помощью программного пакета CAP-88 PC 4.0.1.17 [4]. Для расчета выбраны случайным образом три метеорологических файла, которые характеризуют погодные условия с разным сочетанием категорий устойчивости по классификации Пасквилла [5]. Результаты расчета дозы усредняли по трем наборам метеорологических данных. Дозу критической группы населения оценивали для участков местности, удаленных на расстояние 3, 10 и 30 км от источника выброса. Эффективная доза на указанном расстоянии была усреднена по 16 румбам направления рассеяния выбросов (табл. 3).

Таблица 3. Средняя годовая эффективная доза газоаэрозольного выброса в атмосферу АЭС с разными типами реакторов, мкЗв/год

| Тип реактора | Расстояние от источника выброса, км |                     |                     |
|--------------|-------------------------------------|---------------------|---------------------|
|              | 3                                   | 10                  | 30                  |
| AGR          | 0,14                                | $8,1 \cdot 10^{-2}$ | $5,4 \cdot 10^{-2}$ |
| BWR          | 0,36                                | 0,14                | $5,2 \cdot 10^{-2}$ |
| LWGR         | $5,2 \cdot 10^{-2}$                 | $2,1 \cdot 10^{-2}$ | $9,6 \cdot 10^{-3}$ |
| PWR          | $4,1 \cdot 10^{-2}$                 | $2,4 \cdot 10^{-2}$ | $1,6 \cdot 10^{-2}$ |
| CANDU        | 0,27                                | 0,15                | $9,4 \cdot 10^{-2}$ |

Для каждого типа реактора определены основные радионуклиды, вносящие более 95%-ный вклад в годовую эффективную дозу от газоаэрозольного выброса в атмосферу:

усовершенствованные газоохлаждаемые AGR — из семи контролируемых, %:  $^{14}\text{C}$  61,  $^{35}\text{S}$  24,  $^{41}\text{Ar}$  12;

кипящие BWR из 29 контролируемых, %:  $^{88}\text{Kr} + ^{88}\text{Rb}$  40,  $^{14}\text{C}$  32,  $^{87}\text{Kr}$  13,  $^{135}\text{Xe}$  8,  $^{60}\text{Co}$  2,  $^{131}\text{I}$  1;

большой мощности канальные LWGR из 21 контролируемого, %:  $^{41}\text{Ar}$  30,  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$  18,  $^{137}\text{Cs} + ^{137\text{m}}\text{Ba}$  17,  $^{60}\text{Co}$  12,  $^{88}\text{Kr} + ^{88}\text{Rb}$  6,  $^{14}\text{C}$  5,  $^{131}\text{I}$  1,5;

водо-водяные энергетические PWR из 27 контролируемых, %:  $^{14}\text{C}$  95,  $^3\text{H}$  3;

тяжеловодные CANDU из 27 контролируемых, %:  $^3\text{H}$  86,  $^{14}\text{C}$  12.

Радионуклиды, формирующие более 95% эффективной дозы облучения, рекомендованы Европейской комиссией для включения в программы радиационного контроля [6]. Расчеты показали, что при равных условиях минимальное радиационное воздействие на население оказывают АЭС с PWR и LWGR.

Результаты расчета основных дозообразующих радионуклидов выбросов АЭС с PWR и LWGR были использованы для оценки вклада в облучение критической группы населения газоаэрозольных выбросов отечественных АЭС с ВВЭР и РБМК (табл. 4). Полученные данные позволяют предположить, что контролируемые на АЭС с РБМК радионуклиды отражают облучение критической группы населения, на АЭС с ВВЭР определяют лишь незначительную долю.

Таблица 4. Вклад в эффективную дозу облучения населения радионуклидов, контролируемых на отечественных АЭС, %

| Радионуклид                    | РБМК  | ВВЭР   |
|--------------------------------|-------|--------|
| $^{137}\text{Cs}$              | 10,6  | 0,35   |
| $^{134}\text{Cs}$              | 0,45  | 0,19   |
| $^{60}\text{Co}$               | 12,4  | 0,26   |
| $^{58}\text{Co}$               | 0,008 | 0,01   |
| $^{51}\text{Cr}$               | 0,001 | 0,0001 |
| $^{54}\text{Mn}$               | 0,31  | 0,001  |
| $^{131}\text{I}$               | 1,67  | 0,004  |
| Благородные радиоактивные газы | 50,07 | 1,49   |
| Всего                          | 75,51 | 2,32   |

Оцененный вклад радионуклидов в облучение критической группы населения от газоаэрозольных выбросов АЭС характеризует смоделированную ситуацию формирования радиационного воздействия. Реальные условия распространения радионуклидов в окружающей среде и облучения населения могут сильно отличаться для каждого конкретного местоположения станции. Учет метеоданных, ландшафтных особенностей района расположения АЭС, основных характеристик источников выбросов, годовых выбросов радионуклидов, половозрастной структуры и рациона питания населения, проживающего в районе конкретной АЭС, может существенно повлиять на количественный вклад каждого радионуклида в облучение критической группы населения.

В равных условиях радиационного воздействия газоаэрозольных выбросов разных реакторных установок АЭС дозообразующие радионуклиды существенно отличаются. Для всех АЭС значительный вклад в облучение вносят выбросы в атмосферу  $^{14}\text{C}$  — 5% для РБМК и до 95% для ВВЭР. Радиоактивные благородные газы доминируют в выбросах совершенство-

ванных газоохлаждаемых реакторов, кипящих реакторов и канальных реакторов большой мощности. Только выбросы в атмосферу  $^{35}\text{S}$  усовершенствованных газоохлаждаемых реакторов вносят существенный вклад (24%) в облучение населения. Выбросы трития тяжеловодных ядерных реакторов формируют основную дозу на критическую группу населения.

Ранжирование по вкладу в облучение населения позволяет сформировать основные дозообразующие радионуклиды, определяющие более 95% эффективной дозы для каждого типа реактора, включая эксплуатируемые в нашей стране РБМК и ВВЭР.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Спиридонов С.И., Карпенко Е.И., Шарпан Л.А. Ранжирование радионуклидов и путей облучения по вкладу

- в дозовую нагрузку на население, формирующуюся в результате выбросов атомных электростанций. — Радиационная биология. Радиоэкология, 2013, с. 401—410.
2. Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств в 2012 г. Обнинск, НПО «Тайфун», 2013. 344 с.
3. European Commission Radioactive Discharges Database for Collecting, Storing, Exchanging and Dissemination of Information on Radioactive Discharges (RADD). Brussels, 2013.
4. Rosnick R. CAP88-PC Version 4.0 User Guide. Trinity Engineering Associates, Inc. 8832 Falmouth Dr. Cincinnati, OH 45231-5011, 2014. 276 p.
5. Pasquill F. The estimation of the dispersion of windborne material. — Meteorol. Mag., 1961, v. 9, p. 33—49.
6. On standardised information on radioactive airborne and liquid discharges into the environment from nuclear power reactors and reprocessing plants in normal operation. — J. European Union, 2004, № 2, p. L2/36—L2/46.

Поступила в редакцию 7.10.15

УДК 621.039.7

### ГЕМИОКСИД АЗОТА, СВОЙСТВА, СПОСОБЫ ОБЕЗВРЕЖИВАНИЯ

Кулюхин С.А. (ИФХЭ им. А.Н. Фрумкина РАН, г. Москва),  
Устинов О.А., Шадрин А.Ю., Воскресенская Ю.А. (АО «ВНИИНМ», г. Москва)

Гемиоксид азота (закись азота, оксид диазота)  $\text{N}_2\text{O}$  представляет интерес с точки зрения охраны окружающей среды. Его разрушающее воздействие на озоновый слой атмосферы и в создании парникового эффекта очевидно. Эмиссия  $\text{N}_2\text{O}$  в атмосферу достигает ~12,7 млн т, из них около 35% обусловлены антропогенным происхождением (тепловые электростанции, автомобильный транспорт, некоторые химические производства, сельское хозяйство) [1]. В ядерной энергетике  $\text{N}_2\text{O}$  образуется при растворении нитридного топлива в азотной кислоте в процессе гидрометаллургической переработки или в операциях денитрации, в первом случае его количество достигает 1 моля на 1 моль нитрида урана [2—4].

**Физико-химические свойства.** Гемиоксид азота — бесцветный газ, температура плавления  $-91^\circ\text{C}$ , кипения  $-88,5^\circ\text{C}$  [5]. При комнатной температуре он малоактивен. Основные химические свойства  $\text{N}_2\text{O}$  наиболее полно представлены в работе [6].

$\text{N}_2\text{O}$  реагирует с парами азотной кислоты с образованием азотно-кислого аммония. Азотистая кислота взаимодействует с оксидом диазота с образованием  $\text{NO}$ . В жидкой фазе при  $25^\circ\text{C}$   $\text{N}_2\text{O}$  восстанавливается хлоридом олова, хлоридом титана и сульфитом натрия до аммиака, гидроксилamina и азота соответственно. Гемиоксид азота реагирует с металлами. Порошок магния в контакте с водой и  $\text{N}_2\text{O}$  реагирует с выделением водорода, цинковые опилки реагируют аналогично — водород и азот выделяются совместно с небольшим количеством аммиака. При комнатной температуре  $\text{N}_2\text{O}$  восстанавливается железом во влажной среде с образованием азота и водорода. Цинк, кадмий, марганец, олово, свинец медленно окисляются  $\text{N}_2\text{O}$  при температуре  $550\text{—}650^\circ\text{C}$ , кобальт и никель — при  $230^\circ\text{C}$ , железо — при  $<170^\circ\text{C}$ . Натрий и калий с  $\text{N}_2\text{O}$  при нагревании образуют пероксид и нитрит соответствующего металла. При  $200^\circ\text{C}$   $\text{N}_2\text{O}$  реагирует с оксидом натрия с образованием нитрата натрия и азота. Аналогичная реакция протекает при температуре,  $^\circ\text{C}$ : с диоксидом