

РАДІОАКТИВНІ АЕРОЗОЛІ ТА ГАЗИ (Частина 3)*

Левченко О. Г., д.т.н., проф., зав. каф. ОППЦБ КПІ ім. Ігоря Сікорського

Анотація. Виконано аналіз впливу газоподібних радіоактивних викидів атомних електричних станцій на навколишнє середовище. Показано як атомні електричні станції забруднюють довкілля та негативно впливають на біосферу і людину. Наведена інформація про нуклідний склад та причини утворення аерозолів та газоподібних радіоактивних речовин.

Ключові слова: газоподібні радіоактивні викиди, аерозолі, газоподібні викиди, нуклідний склад, причини утворення

Abstract. The analysis of the impact of gaseous radioactive emissions of nuclear power plant on the environment is performed. It is shown how nuclear power plants pollute the environment and negatively affect the biosphere and man. Information on the nuclide composition and the reasons for the formation of aerosols and gaseous radioactive substances is given.

Keywords: gaseous radioactive emissions, systems, aerosols, gaseous emissions, nuclide composition, causes of formation

Вступ. До недавнього часу головним джерелом штучного тритію були випробування термоядерного зброї. 1973 року загальна кількість тритію на земній кулі становила близько 3000 МКі, тому загальна активність тритію в дощовій воді північної півкулі складала близько $1,6 \cdot 10^{-9}$ Кі/л. Зупинка випробувань ядерної зброї в атмосфері відзначається поступовим зменшенням як його загальної кількості на земній кулі, так і питомої активності в повітрі, воді та інших об'єктах навколишнього середовища [1].

Методики, матеріали та результати досліджень. У реакторах АЕС тритій утворюється в таких випадках: безпосередньо при розщепленні ядерного горючого як продукт потрійного поділу; у результаті (n, γ)-реакції на дейтерії, що знаходиться в теплоносії – воді у вигляді D₂O; при захваті нейтронів ядрами бору або літію, що знаходяться в теплоносії-воді (борне регулювання, корегування водного режиму) і в стрижнях регулювання; в результаті різних реакцій швидких нейтронів з конструкційними матеріалами активної зони [2]. Додатковим джерелом тритію на АЕС з РБМК є газовий контур: тритій утворюється в результаті ядерної реакції на ядрах елементів продувального газу [1].

Установлено, що в режимі нормальної експлуатації активної зони з ТВЕЛами в оболонках з цирконієвого сплаву в теплоносії надходить близько 0,1% тритію, що міститься під оболонкою. Тому швидкість надходження активності тритію a_T , Кі/с, що потрапляє в теплоносії реактора тепловою потужністю W (МВт), можна оцінити за співвідношенням [1]:

$$a_T = 1,23 \cdot 10^{-10} W.$$

Активність тритію в теплоносії за рахунок (n, γ) -реакції на дейтерії можна розрахувати за формулою:

$$a_m = 2,76 \cdot n_H \cdot V \cdot \phi \cdot 10^{-18}, \text{ Кі/с},$$

де n_H – ядерна густина водню в теплоносії; V – обсяг теплоносія в активній зоні; ϕ – усереднена активною зоною щільність потоку теплових нейтронів. Головною є реакція $^{10}\text{B}(n, 2\alpha)\text{T}$, її внесок в утворення тритію близько 85%.

Приблизно такий же результат отримано на АЕС із ВВЕР-440 (Кольська АЕС). При відпрацюванні режиму борного регулювання за 7000 еф. годин роботи АЕС у результаті цієї реакції питома активність тритію у воді першого контуру склала 10^{-3} Кі/л, а за рахунок $\text{D}(n, \gamma)\text{T}$ і $\text{H}(n, \gamma)\text{D}$ ($n, \gamma)\text{T}$ реакцій – $5 \cdot 10^{-6}$ Кі/л. За відсутності борного регулювання на АЕС з ВВЕР-440 (Кольська АЕС, Ново-Воронезька АЕС та ін.) питома активність тритію в реакторній воді в різний час роботи змінювалась в межах $(3,0-7,5) \cdot 10^{-5}$ Кі/л, а максимально зареєстроване значення – до $5 \cdot 10^{-4}$ Кі/л. Такі ж дані отримані на зарубіжних АЕС з РWR [3].

У газовому контурі головною реакцією є реакція на ядрах гелію. Тут за рік утворюється до 80 Кі тритію при питомій активності $6 \cdot 10^{-7}$ Кі/л. Прямі вимірювання питомої активності тритію в контурах АЕС з РБМК (за пробами, відібраними на Ленінградській, Чорнобильській, Курській та Смоленській АЕС) дають результати, що задовільно узгоджуються з оцінками [4, 5].

Частка тритію АЕС, що викидається в атмосферу, з реактором ВВЕР-1000, становить 32% від його загального надходження в навколишнє середовище АЕС (решта ^3H міститься в рідких скиданнях). Середня концентрація ізотопу в повітряному викиді реактора даного типу – 1-2 Бк/л. Для реакторів РБМК ці показники в 10-100 разів нижчі [1].

Вуглець ^{14}C – біогенний елемент, який бере активну участь у біохімічних та біологічних процесах поряд зі своїм стабільним ізотопом. ^{14}C бере участь у всіх обмінних процесах Землі і є основою органічної матерії. Його випромінювання (чистий β -випромінювач, максимальна енергія 155 кеВ, середня енергія 54 кеВ) не становить серйозної радіаційної небезпеки. Проте, завдяки своєму великому періоду напіврозпаду (5730 років), вуглець ^{14}C може накопичуватися і у зв'язку зі своєю біологічною активністю має важливе значення. ^{14}C утворюється в природних умовах у верхніх шарах атмосфери внаслідок взаємодії космічних нейтронів із азотом повітря. Утворюється ^{14}C як і в природних процесах, так і в результаті діяльності. У природі ^{14}C постійно утворюється у верхніх шарах атмосфери внаслідок взаємодії космічних нейтронів з азотом, за 1 с утворюється близько 2,5 атомів/см² або 1,04 ЕБк/рік ($2,5 \cdot 10^4$ Кі/рік). В обмінному басейні Землі давно встановився рівноважний стан, і ^{14}C присутній у кількості 10,4 ЕБк ($2,5 \cdot 10^8$ Кі), масова його активність дорівнює 0,23 Бк/г вуглецю (близько 15 розп./хв у кожному грамі вуглецю). Переважно (90%) ^{14}C природного походження зосереджено в глибинних шарах води в

океані, у біосфері постійно знаходиться близько 4% природного ^{14}C . В організм людини ^{14}C надходить головним чином (99%) з їжею, що обумовлює дозу на все тіло близько 15 мкбер/рік.

При випробуваннях ядерної зброї у повітря надійшло приблизно 220 ПБк ($6 \cdot 10^6$ Кі) ^{14}C . Пов'язана з цим колективна доза всього населення Землі становить приблизно $3 \cdot 10^9$ осіб ($3 \cdot 10^7$ осіб $\cdot$ Зв). На АЕС ^{14}C утворюється як у результаті потрійного розщеплення ядер ^{235}U , так і в результаті реакцій активації ^{13}C , ^{14}N та ^{16}O . При потрійному розщепленні ^{235}U вихід ^{14}C становить $(1,7-1,8) \cdot 10^{-6}$ атомів/розщеплення, так що головним постачальником ^{14}C на АЕС є реакції активації. Ядра – мішені (атоми C, N і O) у реакторі присутні в теплоносії, сповільнювачі та паливній композиції, а також, хоча й у менших кількостях, у конструкційних матеріалах активної зони, тому ^{14}C утворюється практично повсюдно в межах активної зони і відбивача. Основна маса ^{14}C утримується в місці його утворення, в активній зоні, і за її межі не надходить, тому АЕС не відіграють суттєвої ролі як джерело ^{14}C . У реакторах, охолоджуваних водою (BWR, PWR, ВВЕР), ^{14}C утворюється головним чином у теплоносії в результаті реакцій $^{16}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ і $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ (азот присутній у воді як мікродомішка). У реакторах з графітовим сповільнювачем (РБМК, MAGNOX, AGR) останній є сильним джерелом утворення ^{14}C . Розрахунки та вимірювання показали, що на АЕС з реакторами, що охолоджуються водою, при вигорянні палива 30 ГВт $\cdot$ сут/г швидкість U утворення ^{14}C становить усередньому 0,44 ТБк/(ГВт/год). За даними НКДАР ООН, ця величина дещо менша – 0,37 ТБк/(ГВт/рік). Відносний внесок реакцій на ядрах ^{16}O і ^{14}N у сумарну кількість ^{14}C , що утворюється на АЕС з легководними реакторами, становить 40-50% (при концентрації азоту в теплоносії-воді $5 \cdot 10^{-6}$), внесок потрійного розщеплення ^{235}U 5-10 % [1].

У роботах [6, 7] наводяться і дещо інші значення напрацювання ^{14}C : на АЕС з BWR і PWR 0,18-0,37 ТБк/(ГВт $\cdot$ год), причому більше на АЕС з BWR. Зазначається також, що 90% ^{14}C утворюється за рахунок реакції (n, α) на ядрах ^{16}O , а 10% – реакції (n, p) на ядрах ^{14}N . За рік роботи на АЕС з РБМК-1000 утворюється близько 400 Кі ^{14}C , тобто помітно менше, ніж тритію. У теплоносії – воді першого контуру АЕС – питома активність ^{14}C становить зазвичай $(1,5-10) \cdot 10^{-2}$ Бк/л, причому переважно 60-70% – це вуглекислий газ і карбонати, решта – вуглець, пов'язаний зі зваженими у воді мікрочастинками, у дуже малій кількості (до 1%) виявляють ^{14}C у вигляді оксиду вуглецю та метану.

У зв'язку з тим, що великі кількості ^{14}C утворювалися при ядерних випробуваннях, а також при переробці опроміненого ядерного палива, то ^{14}C стають глобальним забруднювачем атмосфери, причому він найбільш значущий із усіх довгоживучих глобальних нуклідів (^{14}C , Т, ^{85}Kr , ^{129}I). Із цієї причини МАГАТЕ реалізує міжнародну програму «Визначення викидів ^{14}C із різних ядерних установок». У даний час у всьому світі проводиться контроль його вмісту в об'єктах зовнішнього середовища, однак допустимих норм його вмісту у викидах АЕС не встановлено [1].

Технологічний процес на АЕС передбачає утворення газо-аерозольних радіоактивних відходів. Також передбачається постійне видалення утворюваних

і присутності газів та аерозолів, їх очищення та зниження активності перед викидом в навколишнє середовище. На АЕС, які працюють за двоконтурною схемою, гази видаляються шляхом здування з фільтрами внутрішньоконтурного очищення теплоносіїв, а також із компенсаторів об'єму. На АЕС, які працюють за одноконтурною схемою, гази видаляють із конденсаторів турбін (ежекторних газів) і на деаераторних установках. Крім цього, на АЕС можуть бути різні інші пристрої та обладнання, в яких з тих чи інших причин накопичуються газоподібні продукти, що підлягають здуванню. До числа таких пристроїв на АЕС з РБМК, наприклад, відносяться циркуляційні баки контуру охолодження СУЗ, здувки газового контуру. Процес переробки рідких радіоактивних відходів на АЕС також супроводжується формуванням газоподібних продуктів, що підлягають видаленню із застосовуваного для переробки цих відходів обладнання [1].

Газоподібні відходи утворюються також внаслідок дегазації різноманітних протікань теплоносія, виходу газів при обміні реакторної води, при відбиранні проб води на аналізи, у басейнах витримки відпрацьованого палива та при дегазації розчинів у баках витримки. Протікання теплоносія можуть бути організованими, тобто передбаченими проектом АЕС, та випадковими (неорганізованими). Організовані протікання – протікання запірно-регулюючої арматури, ущільнень циркуляційних насосів та інші – відводять і направляють в деаератори або спеціальні баки-сховища протікання, де, власне, і утворюються газоподібні відходи. Неорганізовані протікання – результат випадкового порушення герметичності технологічного контуру (утворення різного роду нещільностей в арматурі, зварних швах тощо) – збирають за допомогою трапів і направляють у баки трапних вод. Однак у момент протікання теплоносій дегазується, утворюючи газоподібні відходи [1].

Гази, що відводяться з контуру та технологічного обладнання, складаються зазвичай з азоту, водню, містять домішки водяної пари і, звичайно, газоподібні продукти розщеплення та активації, тобто радіонукліди Кг, Хе та Аг. На АЕС із ВВЕР витрата цих газів порівняно невелика і становить 4-70 м³/год, а на АЕС РБМК вона більша (300-350 м³/год). Активність цих газів досить велика, і тому перед викидом в атмосферу вони піддаються очищенню, точніше, витримці, протягом якої їх активність зменшується за рахунок природного розпаду. Оскільки в газах міститься водень, то при витримці можуть утворитися вибухонебезпечні суміші. Щоб це виключити, газ розводять азотом або пропускають через спеціальні пристрої, в яких водень спалюють в УСГС (установка спалювання гримучої суміші).

Різниця у витратах технологічних газів на АЕС з реакторами різних типів обумовлена насамперед відмінністю обсягів основних контурів та витратами теплоносія на внутрішньоконтурне очищення, а також особливостями технологічних схем АЕС. Особливості технологічного контуру обумовлюють також серйозну різницю в активності газу та його нуклідному складі. Дійсно, перший контур АЕС із ВВЕР замкнутий, час перебування в ньому радіоактивних газів (ІРГ) досить великий, тому активність їх помітно за цей час знижується і

визначається переважно довготривалим ізотопом ^{133}Xe ($T_{1/2} = 5,27$ діб). На АЕС з РБМК контур багаторазової примусової циркуляції газу розімкнутий і ІРГ видаляються з нього протягом декількох секунд або десятків секунд після утворення. Тому поряд з довгоживучим ^{133}Xe в ежекторних газах присутні ІРГ з меншими періодами напіврозпаду. Витрата ежекторного газу може бути вищою за проектний (проектна витрата ежекторних газів на одну турбіну на АЕС з РБМК становить $75 \text{ м}^3/\text{год}$) за рахунок підсмоктування повітря в конденсатор турбіни через його нещільності (зазвичай витрата ежекторних газів на одну турбіну в середньому становить близько $100 \text{ м}^3/\text{ч}$) [1].

АЕС з реакторами на швидких нейтронах через високу хімічну активність натрію мають конструктивні особливості порівняно з АЕС з ВВЕР або РБМК. На цих АЕС досягається високий ступінь герметичності першого контуру, а газові об'єми заповнюються захисним газом (осушеним і очищеним від кисню, аргону або гелію). Причому для запобігання попаданню повітря (через нещільність) у перший контур тиск захисного газу підтримують вище атмосферного (при нормальній експлуатації реактора на 10-50 кПа). Підвищений тиск захисного газу може бути причиною його витоку, а разом з ним і ІРГ, за межі першого контуру, тобто приміщення АЕС. Однак ІРГ досить довго знаходяться в першому контурі, і активність газових витоків переважно визначається ^{133}Xe і може бути досить великою – при роботі АЕС з 0,1% газонещільних ТВЕЛів в активній зоні реактора і при безперервному витоку 0,1% обсягу захисного газу – до $7,5 \cdot 10^{14}$ Бк.

Крім ^{133}Xe активність технологічних газів АЕС із БН та ВВЕР визначає β -активний ^{85}Kr ($T_{1/2} = 10,76$ року), він присутній також у технологічних газах АЕС із РБМК. Однак внесок ^{85}Kr у дозове навантаження на населення, що мешкає поблизу АЕС, невеликий. Викид їх в атмосферу найбільш значимий з погляду глобального забруднення атмосфери [8].

У випадку здування газів для видалення з рідких технологічних середовищ утворюються також радіоактивні відходи в аерозольній формі. Це мікроскопічні крапельки радіоактивних рідин і тверді мікрочастинки, присутні в рідкому середовищі, що несуть газовий потік. Джерелом радіоактивних аерозолів є також неорганізовані протікання теплоносія. При цьому утворення аерозолів є дуже складним фізико-хімічним процесом. Оскільки теплоносії надходить у приміщення в паровій чи парорідинній фазах, частина його осаджується на поверхнях обладнання та приміщення, висихає, вбирається поверхнями, а частина утворює аерозолі. У початковий момент це гідроаерозолі, які в міру висихання стають твердими, частина гідроаерозолів коагулює з частинками пилу, що був у повітрі приміщень, частина коагулює між собою і осідає на підлогу, стіни приміщення, висихає, вбирається поверхнями, частина утворює аерозолі. Леткі радіоактивні речовини, виділяючись з гідроаерозолів або безпосередньо з теплоносія і сорбуються пилом.

Природно, що під час витікання теплоносія через нещільності технологічного контуру в приміщення з нього виділяється йод, причому в різних фізико-хімічних та агрегатних станах. Співвідношення між фізико-хімічними формами радіоактивних ізотопів йоду (молекулярної, органічні сполуки, зокрема

CH₃I) та між агрегатними станами залежить від багатьох факторів. Радіоактивні ізотопи йоду як продукти розподілу утворюються в атомарному вигляді, але в реакторній воді ізотопи йоду існують у різних фізико-хімічних формах, проте кількісного співвідношення між ними встановити поки що не вдається. Не виключено, що при перенесенні у приміщеннях та по вентиляційних системах АЕС це кількісне співвідношення змінюється [1].

На заводах з переробки відпрацьованого палива утворюється значна кількість рідких та твердих аерозолів, що надходять у газоповітряні викиди радіохімічних заводів. У зв'язку з цим у системі газоочищення заводу має бути передбачена можливість уловлювання аерозолів та сухого пилю. Переважна маса аерозолів є сольовими туманами, а також туманами кислот із вмістом дисперсної фази від десятків міліграмів до декількох грамів на кубометр газу. Причому активність туманів обумовлена частками розміром менше 1 мкм. Кількість сухого пилю та аерозолів істотно залежить від способу різання ТВЕЛів та умов розчинення палива [1].

Значна частина аерозолів, що утворюються на операції розчинення палива і, які містять особливо токсичні α -активні радіонукліди, видаляється з газоповітряного потоку на першій стадії його очищення, коли газові відходи піддають кислотному промиванню для уловлювання оксидів азоту. Потім газові викиди очищають від аерозолів за допомогою фільтрів попереднього та тонкого очищення. Надійними в роботі і такими, що забезпечують необхідний ступінь очищення, зарекомендували себе волокнисті самоочисні фільтри. У низькошвидкісних високоефективних самоочисних фільтрах рідкі частинки осаджуються на волокнах, під дією різних сил переміщуються у фільтрувальному шарі і потім видаляються з фільтра.

Література

1. Огородников Б.И., Пазухин Э.М., Ключников А.А. Радиоактивные аэрозоли объекта «Укрытие»: 1986 – 2006 гг. – Чернобыль, 2008. – 456 с.
2. Реализованные значения отношений активностей $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ в топливных частицах, воздухе и выпадениях как индикатор природы развития аварии на Чернобыльской АЭС // Бюллетень по атомной энергии. – 2004. – № 4. – С. 34-39.
3. Silkko K., Aaltinen H., Mustonen R. et al. Airborne radioactivity in Finland after Chernobyl accident in 1986. Suppl. 1 to annual report STUC-A 55. June 1987. – P. 45.
4. Kownacka L., Jaworowski Z. Vertical distribution of ^{131}I and radiocesium in the atmosphere over Poland after Chernobyl accident // Acta Geophysica Polonica, – 1987. – Vol. 35, No. 1.
5. Гаврилин Ю.И. Последствия двух сценариев развития аварий на Чернобыльской АЭС // Бюллетень по атомной энергии. – 2001. – № 8. – С. 20-28.
6. Гаврилин Ю.И. Пролонгированные выпадения радионуклидов в результате аварии на Чернобыльской АЭС и их обусловленность // Там же. – 2003, № 11. – С. 34-40.

7. Лошилов Н.А., Кашпаров В.А., Поляков В.Д. и др. Ядерно-физические характеристики горячих частиц, образовавшихся в результате аварии на ЧАЭС // Радиохимия. – 1992. – № 4. – С. 113-119.

8. Котельников Р.Б., Башлыков С.Н., Каштанов А.И., Меньшиков Т.С. Высокотемпературное ядерное топливо. – М.: Атомиздат, 1978.

* Стаття продовжує серію публікацій про проблеми радіаційної безпеки, розпочату в попередніх збірниках конференцій.