

УДК 621.039.766: 546.11

DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2026.3.11>

Оригинальная статья / Original paper

Методики и результаты измерений поступления в атмосферу ^3H и ^{14}C при эксплуатации исследовательских ядерных установок ГНЦ НИИАР

А.А. Рыбин, М.В. Ряскова, В.В. Серебряков

АО «ГНЦ НИИАР»,

433510 Россия, Ульяновская обл., г. Димитровград, Западное ш., 9

Реферат. В целях охраны окружающей среды и обеспечения радиационной безопасности населения в АО «ГНЦ НИИАР» совершенствуются методические аспекты контроля состава и активности радиоактивных веществ в технологических средах и РАО исследовательских ядерных установок (ИЯУ) и других радиационно опасных объектов (РОО). Описана созданная система контроля активности генетически и глобально опасных ^3H (третий) и ^{14}C (углерод-14) в газо-аэрозольной смеси, удаляемой через высотную трубу вентиляционного центра. Отбор ^3H в виде оксида осуществляют на цеолитовый сорбент с последующим извлечением тритиевой влаги на установке термовакуумной десорбции. Выделение ^{14}C в составе углекислого газа проводят методом барботирования через раствор щелочи и сбора в виде сухой пробы углекислого бария. Отбор газообразных и летучих соединений ^3H и ^{14}C осуществляют методом предварительного термокаталитического окисления внутри электрической трубчатой печи до диоксида трития и углекислого газа, которые из потока тут же улавливаются в адсорбере и барботере. Удельные активности ^3H и ^{14}C в пробах измеряют жидкостно-сцинтилляционным методом. Представлена разработанная методика измерений удельной активности ^{14}C непосредственно в пробах карбоната бария в жидком сцинтилляторе в виде эмульсии, определены оптимальные условия измерений и метрологические свойства счетных образцов на радиометре Hidex SL300. Расширенная неопределенность результатов при минимально измеряемой активности 0,2 Бк/г в пробе BaCO_3 не превышает 23%. Приведены фактические значения активности ^3H и ^{14}C в выбросах и приземном слое воздуха на территории расположения исследовательских ядерных установок АО «ГНЦ НИИАР». Значения выбросов трития в атмосферу в предыдущие 20 лет составляли от 3,8 до 6 ТБк в год, что меньше 1% от допустимого выброса. Приведенные впервые интегрированные значения выброса ^{14}C за пять лет составили от 40 до 70 ГБк в год.

Ключевые слова: тритий, углерод-14, система контроля, эксперименты, методы отбора, пробы, радиоактивность, методики измерений, выбросы.

Для цитирования: Рыбин А.А., Ряскова М.В., Серебряков В.В. Методики и результаты измерений поступления в атмосферу ^3H и ^{14}C при эксплуатации исследовательских ядерных установок ГНЦ НИИАР. *Известия вузов. Ядерная энергетика*. 2026;3:154–167. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2026.3.11>

© Рыбин А.А., Ряскова М.В., Серебряков В.В., 2026

Введение

Научно-исследовательский институт атомных реакторов – крупнейший в России и мире государственный научный центр (ГНЦ НИИАР) атомной отрасли и крупнейшая экспериментальная площадка, на которой сосредоточены исследовательские ядерные установки (ИЯУ), крупные материаловедческие и радиохимические лаборатории, предназначенные для проведения исследований в области атомной энергетики, в том числе для отработки реакторных технологий и наработки радиоизотопной продукции. В целях обеспечения радиационной безопасности в соответствии с нормативными документами в ГНЦ НИИАР создана система контроля радиоактивных отходов (РАО), образующихся в технологических процессах на радиационно опасных объектах (РОО).

Существующий комплекс по обращению с РАО обеспечивает их безопасную локализацию и долговременное хранение в зависимости от их вида, предотвращая распространение ионизирующего излучения и радиоактивных веществ (РВ) в окружающую среду [1]. Практически единственным и постоянным каналом поступления РВ в форме инертных радиоактивных газов (ИРГ) и летучих (подвижных) радиоактивных аэрозолей в атмосферу является высотная труба вентиляционного центра несмотря на существующую двухступенчатую очистку вентиляционного воздуха на специальных высокоэффективных фильтрах.

Функционирующая в ГНЦ НИИАР стационарная система оперативного контроля выбросов (СОКВ) позволяет отслеживать активность и радионуклидный состав всех нормированных и подлежащих контролю радионуклидов непосредственно в газоаэрозольных выбросах (ГАВ) методом отбора контролируемой газовой среды из галереи высотной трубы по пробоотборным линиям к устройствам детектирования СОКВ, непрерывно фиксируя гамма-спектры радионуклидов в форме аэрозолей и ИРГ с помощью полупроводниковых детекторов на основе особо чистого германия.

Исключительно важными с точки зрения радиационной безопасности населения является контроль глобальных и генетически опасных радионуклидов ^3H (тритий) и ^{14}C (углерод-14), являющихся долгоживущими изотопами наиболее распространенных природных химических элементов – водорода и углерода и составляющих структурную основу органических соединений, в том числе животных и человека. Находясь в составе газоаэрозольных выбросов, ^3H и ^{14}C в оксидных или газообразных соединениях не задерживаются существующими фильтрами. Сложность идентификации этих радионуклидов в смеси других радиоактивных продуктов обусловлена низкой энергией их бета-излучения и отсутствием гамма-излучения, что исключает применение распространенных методик и гамма-измерительных приборов, в том числе используемых в СОКВ. Методическая сложность и трудоемкость контроля ^3H и ^{14}C в радиоактивных средах требует применения специальных методов и устройств выделения, идентификации и измерения их активности.

В ГНЦ НИИАР в течение многих лет проводятся экспериментальные исследования по контролю ^3H . Разработаны необходимые методики отбора, выделения, концентрирования и измерения счетных образцов ^3H . Получены важные научные результаты о содержании и распределении этого радионуклида в различных технологических средах реакторных установок и радиоактивных отходах, а также в воздухе помещений реакторных установок и в вентиляционных ГАВ [2]. После включения ^{14}C в перечень

радионуклидов, подлежащих обязательному контролю [3], начаты необходимые исследования [4], результаты которых описаны ниже.

Источники образования радионуклидов

^3H и ^{14}C , как и другие радионуклиды, образуются в реакторах при делении ядер топливного материала, а также в результате взаимодействия нейтронов с ядрами ряда элементов, входящих в состав топлива, теплоносителя, замедлителя, отражателя и конструкционных материалов. В ИЯУ значительно больше источников образования радионуклидов в отличие от АЭС из-за разнообразия конструкционных и специально облучаемых материалов. Вклад каждой реакции (табл. 1) в общую активность образовавшегося радионуклида зависит от сечения взаимодействия, спектра нейтронов и вида материалов в активной зоне.

Таблица 1

Характеристики основных нейтронных реакций образования ^3H и ^{14}C

Реакция	Сечение реакции, 10^{-24} см^2	Энергия взаимодействия, МэВ	Природная распространенность активируемого элемента, %
$^1\text{H} (n, \gamma) ^2\text{H}$	0,33	Тепловая	99,985
$^2\text{H} (n, \gamma) ^3\text{H}$	$5,7 \cdot 10^{-4}$	Тепловая	0,015
$^3\text{He} (n, p) ^3\text{H}$	5330	Тепловая	$1,38 \cdot 10^{-4}$
$^{10}\text{B} (n, \alpha) ^7\text{Li} \rightarrow$ $\rightarrow ^7\text{Li} (n, n^{\alpha}) ^3\text{H}$	3840 0,4	Тепловая 5 – 14	19,6 92,58
$^9\text{Be} (n, \alpha) ^6\text{He} \rightarrow \beta, ^6\text{Li} \rightarrow$ $\rightarrow ^6\text{Li} (n, \alpha) ^3\text{H}$	0,13 950	0,5 – 10 Тепловая	100 7,42
$^{14}\text{N} (n, p) ^{14}\text{C}$	1,80	Тепловая	99,63
$^{17}\text{O} (n, \alpha) ^{14}\text{C}$	0,24	Тепловая	0,038
$^{13}\text{C} (n, \gamma) ^{14}\text{C}$	$9 \cdot 10^{-4}$	Тепловая	1,11
$^{16}\text{O} (n, \alpha) ^{15}\text{N}$	0,1 – 0,4	12 – 16	99,76
$^{15}\text{N} (n, np) ^{14}\text{C}$	$(2 - 6) \cdot 10^{-3}$	12 – 16	0,37
$^{235}\text{U} (n, f) ^3\text{H}$	$0,85 \cdot 10^{-4}^*$ $2 \cdot 10^{-4}^*$	Тепловой реактор Быстрый реактор	*доля выхода на одно деление
$^{235}\text{U} (n, f) ^{14}\text{C}$	$1,7 \cdot 10^{-6}^*$	Тепловой реактор	

В водном теплоносителе реакторов ВК-50, МИР-М1, СМ-3, РБТ-6 и РБТ-10 существенное количество ^3H образуется в результате взаимодействия нейтронов с естественным протием и дейтерием в составе воды, а ^{14}C при взаимодействии с кислородом в молекулах воды и с примесным азотом и углеродом. В натриевом теплоносителе реактора БОР-60 тритий образуется из примесного лития. В стержнях СУЗ ВК-50, БОР-60 ^3H и ^{14}C образуются по реакциям нейтронов с карбидом бора, а ^3H в теплоносителе ВК-50 – при борном регулировании мощности. Преобладающий вклад в образование ^3H вносят последовательные реакции нейтронов с бериллием, примесным и дочерним литием в реакторах МИР-М1, СМ-3, РБТ-6, РБТ-10, где в качестве замедлителя, отражателя или топливной матрицы в твэлах используется бериллий.

Часть образующихся в твэлах и конструкционных материалах ^3H и ^{14}C в результате диффузии, а также через дефекты в оболочках поступает в теплоноситель. В защитном инертном газе реактора (газовой полости) и охлаждающем корпус биологической защиты воздухе (БОР-60), где содержится азот, кислород, углерод, также образуется и ^{14}C .

Образующиеся атомы ^3H и ^{14}C химически связываются с материалом среды, где они возникли, образуя гидриды, карбиды, углеводороды в виде твердых примесей или газов. В теплоносителе это, в основном, оксид трития (тритиевая вода) и газообразный водород, углекислый газ, метан и другие углеводороды, которые распределяются в контурах и технологических средах ИЯУ. В результате тех или иных процессов (испарение и дегазация с поверхностей бассейнов, диффузия, протечки из первого контура) радионуклиды попадают в воздух рабочих помещений. Далее по системам вентиляции направляются на вентиляционный центр и через высотную трубу поступают в атмосферу.

Система контроля выбросов ^3H и ^{14}C

В результате экспериментальных исследований на базе СОКВ создана усовершенствованная система для одновременного выделения и отбора проб ^3H и ^{14}C из газо-аэрозольной смеси, удаляемой через высотную трубу вентиляционного центра. Ее схема представлена на рис. 1. Поступающая из галереи высотной трубы контролируемая воздушная смесь через раздаточную емкость и комбинированный фильтр очистки от радиоактивных аэрозолей направляется на пробоотборники системы отбора проб. После отбора пробоотборники передают в радиационно-технологическую лабораторию, где выделяют, обрабатывают пробы и готовят счетные образцы для измерения активности ^3H и ^{14}C по разработанным и аттестованным в ГНЦ НИИАР методикам.



Рис. 1. Схема системы отбора проб ^3H и ^{14}C из вентиляционного воздуха: 1 – линия отбора газа из галереи высотной трубы; 2 – фильтр аэрозольный; 3 – вентиль; 4 – адсорбер-пробоотборник; 5 – барботер со щелочью; 6 – счетчик газовый; 7 – ротаметр регулировочный; 8 – вакуумная линия; 9 – печь электрическая трубчатая; 10 – колонка окислительная – катализатор; 11 – регулятор температуры

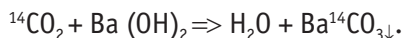
Метод отбора проб ^3H

Отбор ^3H из потока в виде основного соединения – оксида, паров воды осуществляется методом сорбции, отработанным в лабораторных экспериментах с парами стандартных образцов тритиевой воды (СОТВ) [5]. В качестве сорбента используется мелко-сферический цеолит NaX. В ходе исследований разработаны стальные пробоотборники-адсорберы, конструкция которых позволяет подключать их к штатным линиям СОКВ, к переносным устройствам отбора из воздуха, а также к установке термовакuumной десорбции отобранной влаги из цеолита. По завершении очередного непрерывного в течение 10–15-ти суток пробоотбора адсорберы отсоединяют, на их место подключают подготовленные «сухие» и осуществляют следующий отбор. Снятые адсорберы передают на установку термовакuumной десорбции для выделения сорбированной влаги и последующих измерений в ней удельной активности ^3H .

Разработанный сорбционный метод универсален и привлекателен тем, что происходит полное выделение оксида трития из контролируемого потока, он исключает применение агрессивных щелочных или кислотных сред для поглощения трития, не вносит примесей и не приводит к разбавлению пробы, т.е. к снижению удельной активности; он удобен при длительном пробоотборе без вмешательства персонала. Этим методом более 20-ти лет осуществляется непрерывный регламентный контроль активности ^3H в оксидной форме в составе газоаэрозольных поступлений в атмосферу. Он применяется и при определении активности трития в помещениях ИЯУ, а также в приземном воздухе на территории санитарно-защитной зоны предприятия (СЗЗ).

Метод отбора проб ^{14}C

Система предусматривает отбор ^{14}C в составе его основного соединения – углекислого газа известным методом барботирования через раствор щелочи и сбора в виде нерастворимой сухой пробы углекислого бария [6]. Барботер установлен на потоке контролируемого газа после адсорбера оксида трития, что предотвращает влияние ^3H на последующие радиометрические измерения активности ^{14}C . Связывание углерода происходит в результате реакции



Эксперименты в лаборатории и на стенде вентиляционного центра с применением методов взвешивания собранного карбоната бария и титрования поглотительного раствора позволили определить оптимальные параметры отбора проб из атмосферного воздуха и из реальных газоаэрозольных выбросов, при которых эффективность выделения углекислого газа из контролируемой среды составляет более 95%.

После прекращения отбора барботер доставляют в лабораторию. Полученный в результате пробоотбора осадок карбоната бария BaCO_3 отфильтровывают из щелочного раствора с помощью мелкодисперсного фильтра, высушивают до постоянного веса при комнатной температуре, затем измельчают, прокаливают в печи при температуре 130–140°C в течение пяти часов для удаления случайно возможной примеси оксида трития.

Метод концентрации ^{14}C из большого объема воздуха в виде сухой пробы и дальнейшие процедуры подготовки счетных образцов для измерения удельной активности прост и экономичен. Нет необходимости в применении агрессивных сред для связывания углерода. Выделенную пробу можно долго хранить для последующей обработки в лабораторных условиях и измерений активности.

Метод отбора проб газообразных соединений

Для выполнения требований контроля других нормируемых, кроме оксида ^3H и диоксида ^{14}C , газообразных и летучих соединений (газообразный тритий, элементарный углерод, оксид углерода, метан и др.) на стенде существует параллельная линия отбора, которая помимо аналогичных пробоотборников и устройств в первой линии включает колонку с платиновым катализатором внутри электрической трубчатой печи. В ней при регулируемой необходимой от 550 до 680°C температуре происходит окисление газообразных и летучих соединений до оксида трития и углекислого газа, которые далее также улавливаются из потока в адсорбере и барботере. Анализ параметров пробоотборов и результатов последующих измерений активности в пробах по обеим линиям позволяет определить вклад летучих и газообразных соединений радионуклидов в их общую активность в контролируемой среде.

Контроль газообразных и летучих соединений ^3H и ^{14}C актуален в связи с работой реакторов БОР-60, СМ-3 и МИР.М1, а также защитных камер при разделке твэлов или во время радиохимических операций с отработанным топливом и облученными материалами, т.е. там, где наиболее вероятно их образование.

Десорбция и сбор тритиевой пробы

Извлечение тритиевой влаги из адсорберов осуществляют на лабораторной установке методом термовакuumной десорбции с одновременным сбором выделяемого оксида трития в холодной ловушке. Установка (рис. 2) состоит из вакуумной системы, к которой подсоединяется пробоотборник-адсорбер с пробой, помещенный в трубчатую электрическую печь, и системы автоматического регулирования и поддержания температур. Вакуумным насосом в системе поддерживается давление 0,1–0,5 кПа. По мере нагрева цеолита по заданной программе до 420–440°C

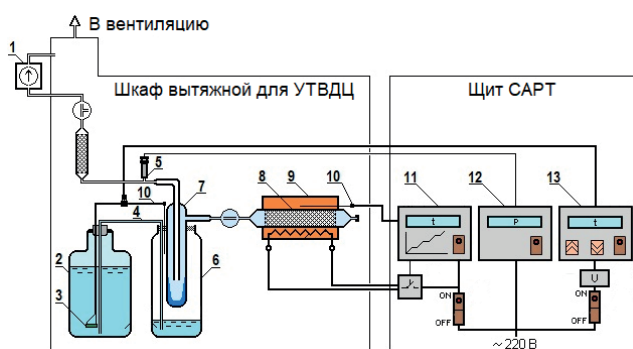


Рис. 2. Схема установки термовакuumной десорбции цеолита (УТВДЦ) с системой автоматической регулировки температур (САРТ): 1 – насос вакуумный; 2 – сосуд Дьюара с жидким азотом; 3 – нагреватель керамики; 4 – трубка подачи азота из сосуда Дьюара в термостат; 5 – лампа вакуумная; 6 – термос; 7 – холодная ловушка; 8 – пробоотборник-адсорбер; 9 – печь электрическая трубчатая; 10 – термопары ХА; 11 – регулятор температуры печи; 12 – вакуумметр; 13 – регулятор температуры азота

пары тритированной влаги десорбируются и поступают в холодную ловушку. Холодная ловушка расположена в термостате с жидким азотом. Пополнение азота в термостате осуществляется автоматически из сосуда Дьюара путем нагрева электрическим током керамического резистора, при этом азот частично переходит в газ и за счет повышения давления по трубке поступает в термос, охлаждая холодную ловушку до температуры минус 90°C. Регуляторы с помощью термопар отслеживают температуру в ловушке и в печи, управляя подачей азота и нагревом цеолита. Полное извлечение влаги происходит за пять часов. После десорбции тритиевую пробу дистиллируют для надежной очистки от возможных неактивных и радиоактивных примесей, с полученным дистиллятом затем готовят счетные образцы для измерений удельной активности трития.

Методики измерения удельной активности ^3H

Удельную активность ^3H в пробах измеряют распространенным жидкостно-сцинтилляционным методом по разработанным и аттестованным методикам [7]. Во всех ранних исследованиях [2] применяли отечественный радиометр РЖС-05. Методическая минимально измеряемая активность (МИА) составляет 5 Бк/г, это соответствует объемной активности 10 Бк/м³ и вполне достаточно для контроля трития в вентиляционных выбросах. Для слабоактивных проб в последние годы используются радиометр SL300 фирмы Hidex Oy (Финляндия) и жидкий сцинтиллятор HiSafe-3, при этом МИА составляет в воде 0,03 Бк/г, в воздухе 0,06 Бк/м³. Значения основных характеристик аттестованных методик измерения удельной активности ^3H в водных пробах приведены в табл. 2.

Таблица 2

Значения основных характеристик методик измерения удельной активности ^3H в водных пробах и ^{14}C в пробах BaCO_3 ($P=0,95$)

Радионуклид	Радиометр и номер методики (или ссылка)	Диапазон удельной активности в пробе, Бк/г	Расширенная неопределенность удельной активности, %
^3H	SL300 ФР.3.38.2026.00942	0,03 – 0,07	16
		0,07 – 0,3	8
		0,3 – 1,3	5
		1,3 – 5,0	6
		5,0 – 10 ⁴	5
	РЖС-05 ФР.3.38.2026.00940	5,0 – 50	26
		50 – 130	19
		130 – 3,7·10 ⁴	6
^{14}C	SL300 ФР.3.38.2024.00458	0,2 – 3,0	23
		3,0 – 5,0	12
		5,0 – 100	7

Методика измерения активности ^{14}C

По результатам лабораторных экспериментов и метрологических исследований [4] создана методика измерений удельной активности ^{14}C непосредственно в пробах карбоната бария жидкостно-сцинтилляционным методом в отличие от известной опубликованной методики измерения BaCO_3 торцовым бета-счетчиком [6] и других методов [8]. Счетный образец при этом представляет собой смесь высушенной и измельченной в порошок навески пробы $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ и жидкого сцинтиллятора в полиэтиленовом измерительном флаконе Perkin Elmer. Непосредственно перед началом измерений флакон встряхивают до образования визуально однородной эмульсии. Исследовали свойства эмульсии во времени и ее влияние на результаты измерений на радиометре SL300. При этом применяли образцовые радиоактивные растворы (ОРР) в качестве «внутренней метки», а также отобранные в ходе экспериментов реальные пробы карбоната бария, содержащие ^{14}C из газоаэрозольных выбросов. Установлены зависимости результатов измерений от времени, в течение которого происходило осаждение и осветление первоначальной эмульсии, найдены условия их стабильности. Получены зависимости эффективности регистрации ^{14}C (кривые гашения) от состава счетных образцов, от массы пробы карбоната бария и жидкого сцинтиллятора, а также от массы возможных примесей воды, щелочи и кислоты в счетном образце. Изучены фоновые эффекты влияния, эффекты хемилюминесценции и флуоресценции. Эксперименты позволили выработать оптимальные условия для достижения максимальной эффективности регистрации, стабильности результатов и получения наилучших метрологических свойств предложенной методики измерения удельной активности ^{14}C в пробах $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$. Установлен оптимальный состав счетных образцов: масса BaCO_3 1 г в объеме сцинтиллятора 15 см³.

Исследованы метрологические характеристики радиометра Hidex SL300. Особенностью его конструкции является наличие трех фотоэлектронных умножителей для регистрации излучений от счетного образца с трех симметричных направлений. Это позволяет реализовать прогрессивный, так называемый метод тройных-двойных совпадений (TDCR Method), по которому эффективность регистрации рассчитывается в каждом измерении как отношение зарегистрированных тройных совпадений к двойным, и активность определяют по интенсивности двойных совпадений по следующим формулам:

$$\text{TDCR} = \text{TPM} / \text{CPM}, \quad (1)$$

$$\text{DPM} = \text{CPM} / \text{TDCR}, \quad (2)$$

где CPM – интенсивность счета импульсов в минуту в мажоритарных двойных совпадениях; TPM – интенсивность счета импульсов в минуту в тройных совпадениях; TDCR – отношение числа зарегистрированных тройных совпадений к числу мажоритарных двойных совпадений, по «TDCR-методу» – эффективность регистрации; DPM – число распадов радионуклида в минуту.

Удельную активность в пробе рассчитывают по формуле

$$A_y = \text{DPM} / m \cdot 60, \text{ Бк/г}, \quad (3)$$

где m – масса навески пробы в счетном образце, г; 60 – число секунд в минуте.

TDCR-метод был разработан для прозрачных счетных образцов при отсутствии заметного гашения сцинтилляций в первую очередь для водных тритиевых проб. При измерениях счетных образцов ^{14}C с различными примесями или с эмульсией происходит гашение сцинтилляций, пропорциональное массе примесей и (или) навески карбоната бария (эмульсии) и изменяющееся во времени. Причем происходит различное влияние на счет двойных и тройных совпадений, что меняет значение TDCR в ходе измерений. Поэтому для аппаратной эффективности TDCR предложено вводить поправочный коэффициент f , названный фактором гашения. При расчете активности эффективность регистрации определяется формулой

$$\varepsilon = \text{TDCR} \cdot f. \quad (4)$$

Однако это усложняет методику и вносит дополнительную погрешность. В то же время, как было экспериментально установлено, значения двойных совпадений в отличие от TDCR стабильны во времени для счетного образца с $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ заданного состава в пределах 3% (рис. 3), что не превышает паспортное значение расширенной неопределенности удельной активности образцовых радиоактивных растворов, применяемых в исследованиях и при аттестации методики. Исходя из вышеизложенного, при измерениях на радиометре SL300 методически предпочтительней рассчитывать активность ^{14}C по счету двойных совпадений CPM, а значение эффективности их регистрации ε определять заранее в ходе калибровки. Это и было принято в разработанной методике, в соответствии с чем уравнение (3) принимает вид

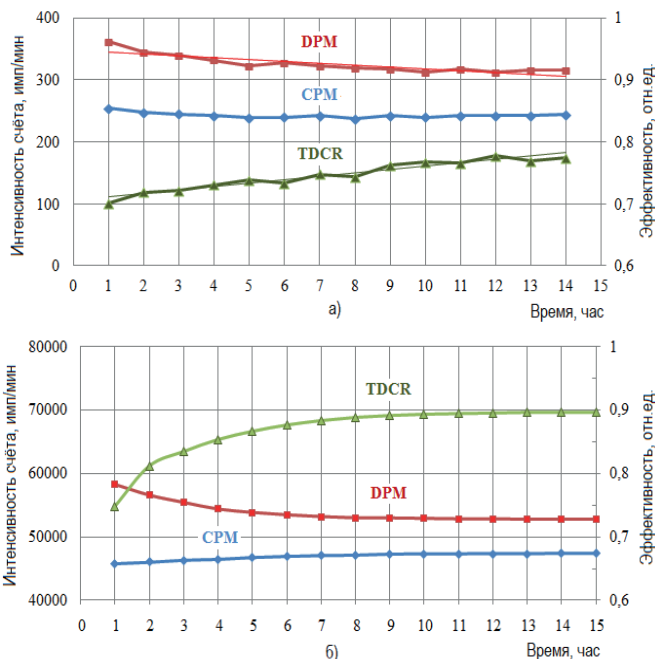


Рис. 3. Графики изменения во времени результатов измерений счетного образца с пробой из ГАВ BaCO_3 в ЖС HiSafe-3 без OPP ^{14}C (а) и с OPP ^{14}C (б): CPM – счет двойных совпадений; DPM – счет распадов в минуту; TDCR – эффективность

$$A_y = \text{DPM}/m \cdot 60 = \text{CPM}/f \cdot \text{TDCR} \cdot m \cdot 60 = \text{CPM}/\varepsilon \cdot m \cdot 60, \text{ Бк/г.} \quad (5)$$

При выбранном оптимальном составе счетного образца эффективность регистрации двойных совпадений $\varepsilon = 0,86 \text{ Бк}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$. Установленные в ходе аттестации основные метрологические характеристики разработанной методики в зависимости от уровня активности в пробе приведены в табл. 2.

Расчет выбросов

Разработанные методы отбора, обработки проб и методики измерений удельной активности позволили в течение длительного периода наблюдений оценивать объемную и суммарную активность ^3H и ^{14}C в газозвушной смеси радиоактивных продуктов, поступающих в атмосферу через высотную вентиляционную трубу, а также в воздухе на территории СЗЗ предприятия.

Объемную активность и выброс радионуклидов рассчитывали в общем случае по следующим формулам:

$$a_v = a_y \cdot m_{\text{пр}} / (V_o \cdot \varepsilon_o), \quad (6)$$

$$B = a_v \cdot Q, \quad (7)$$

где a_v – объемная активность радионуклида, Бк/м³; a_y – измеренная удельная активность радионуклида в пробе, Бк/г; $m_{\text{пр}}$ – масса отобранной пробы, г; V_o – объем отобранного контролируемого воздуха, м³; ε_o – эффективность выделения радионуклида при отборе; Q – номинальный расход воздуха через трубу за сутки в период контроля, м³; B – выброс радионуклида за сутки, Бк.

Результаты контроля ^3H

Удельная активность ^3H в оксидной форме в газозвушных поступлениях в атмосферу в разные периоды составляла в большинстве проб от 50 до 150 Бк/г, иногда достигала 300 Бк/г, объемная активность была в пределах от 0,4 до максимум 2 кБк/м³. Установлено, что в зимний период года активность трития в вентиляционных системах ниже, чем в летний. То же наблюдали и для различной влажности воздуха, хотя строгой корреляции между активностью и влажностью не установлено. Косвенно это указывает на наличие образующегося в реакторе газообразного трития, который, перемещаясь с воздухом по системам вентиляции, окисляется, увеличивая объемную концентрацию и активность контролируемого оксида. В то же время рассмотрение результатов за многолетний период не дает четкой корреляции величины выбросов трития с режимами работы и суммарной мощностью всех ИЯУ.

Среднесуточные значения поступления ^3H в атмосферу через высотную трубу при нормальной работе ИЯУ ГНЦ НИИАР составляли от 7 до 25 ГБк в сутки. Кратковременное увеличение поступлений (рис. 4а) наблюдалось с появлением газовой неплотности твэлов в ТВС при работе реакторов (реактора) на мощности, при сдувах защитного газа из компенсаторов объема реакторного контура, при регенерации холодной ловушки БОР-60. Также при разделке отработавших твэлов и реакторных материа

лов фиксировали выделение трития в исследовательские защитные камеры и далее в вентиляцию. Значения суммарной активности трития, поступившего в атмосферу в предыдущие 20 лет при нормальной работе ИЯУ, составляли от 3,8 до 6 ТБк в год (рис. 4б), что меньше 1% от назначенного для АО «ГНЦ НИИАР» допустимого выброса.

На территории СЗЗ удельная активность трития в пробах влаги из приземного атмосферного воздуха составила 0,04–0,2 Бк/г, что соответствует объемной активности (максимум) 1 Бк/м³, а в осадках на поверхности земли (дождь, снег) – менее 0,03 Бк/г. Эти значения удельной активности намного меньше значений уровня вмешательства, равного для трития 7,7 Бк/г, а значения объемной активности в тысячи раз меньше допустимого значения для населения, равного 1,9 кБк/м³ по НРБ-99/2009¹.

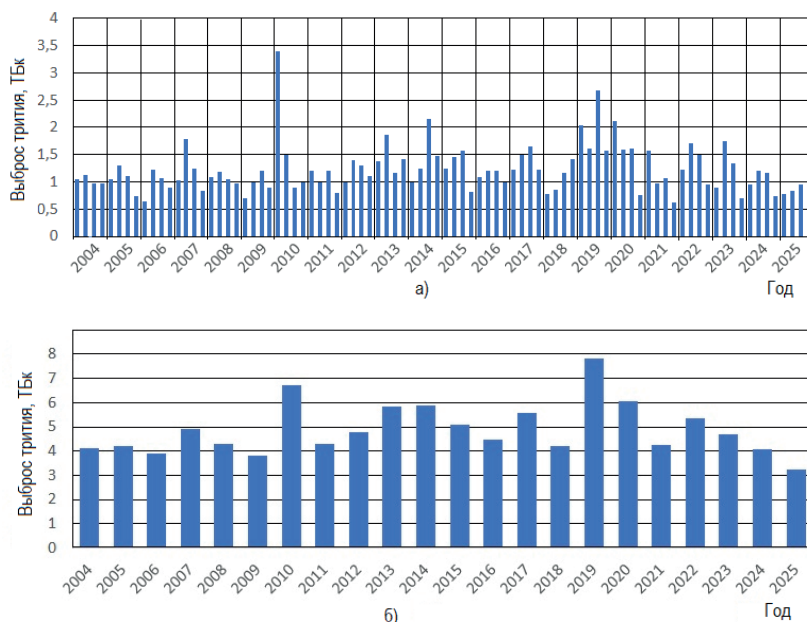


Рис. 4. Контрольные значения суммарной активности ^3H в виде оксида в выбросах в атмосферу за квартал (а) и за год (б)

Результаты контроля ^{14}C

Измеренная удельная активность ^{14}C в пробах BaCO_3 из газовой воздушной среды высотной трубы в разные периоды составляла от 1,0 до 7,0 Бк/г (рис. 5), что в пересчете на массу углерода составляет от 16 до 115 Бк/г С. Удельная активность в приземном воздухе на территории СЗЗ была в 100 раз меньше, чем в ГАЗ. Это указывает на наличие в выбросах техногенного ^{14}C , очевидно, в смеси с природным ^{14}C , поступающим в помещения ИЯУ из атмосферы по приточной вентиляции. Соответствующая объемная активность ^{14}C колебалась в течение разных лет от 1,0 до 13,0 Бк/м³, а в приземном воздухе на территории размещения ИЯУ ГНЦ НИИАР не превышала 1,0 Бк/м³, что меньше 2% от допустимой объемной активности для населения, равной 55 Бк/м³ относительно соединения $^{14}\text{CO}_2$, по НРБ-99/2009.

¹ СанПиН 2.6.1.2523-09 Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009), URL: <https://meganorm.ru/Index2/1/4293828/4293828132.htm>

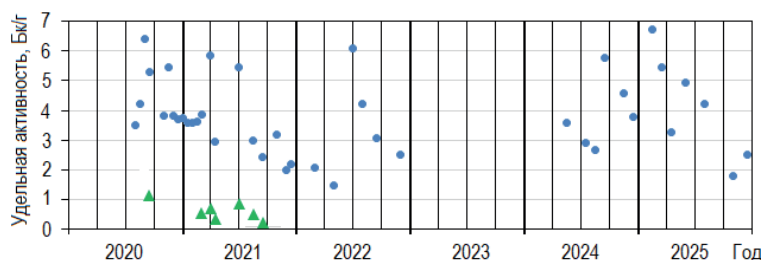


Рис. 5. Удельная активность ^{14}C в пробах BaCO_3 из контролируемых сред: ● – из выбросов; ▲ – из приземного воздуха

Усредненные за время отборов выбросы ^{14}C через высотную трубу в атмосферу за годы наблюдений колебались от 0,03 до 0,3 Гбк в сутки (рис. 6).

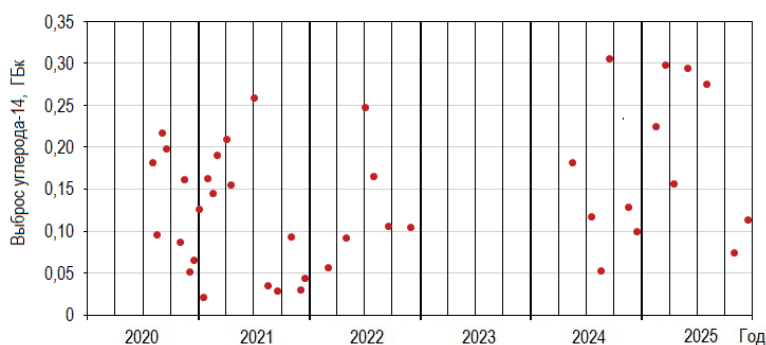


Рис. 6. Среднесуточные значения активности выбросов ^{14}C в виде диоксида в атмосферу

Интегрированные расчетные значения выбросов составляли от 40 до 70 Гбк в год. Полученные экспериментальные результаты могут быть использованы при назначении контрольных уровней выбросов ^{14}C для АО «ГНЦ НИИАР».

Литература

1. Чететкин Ю.В., Грачев А.Ф. Обращение с радиоактивными отходами. Самара: Самарский Дом печати, 2000, 348 с. ISBN 5-7350-0304-6.
2. Рыбин А.А., Рождественская Л.Н., Ряскова М.В., Серебряков В.В. Методы и результаты контроля содержания трития в воздухе рабочей зоны и в вентиляционных газоаэрозольных выбросах. *Вопросы радиационной безопасности*. 2009;3:22–32.
3. Распоряжение Правительства Российской Федерации от 20.10.2023 № 2909-р (ред. от 05.06.2024) «Об утверждении перечня загрязняющих веществ, в отношении которых применяются меры государственного регулирования в области охраны окружающей среды». *Собрание законодательства РФ*. 2023, № 44, Ст. 7912. Электронный ресурс: <http://pravo.gov.ru> (дата доступа 09.02.2026).
4. Рыбин А.А., Ряскова М.В., Барышников С.Г., Ильина Е.Г. Создание методики измерений активности углерода-14 в газовой среде. Научный годовой отчет АО «ГНЦ НИИАР» за 2023 г. Димитровград, АО «ГНЦ НИИАР», 2024, с. 222–225. ISBN 978-5-94831-219-4.
5. Рыбин А.А., Рождественская Л.Н. Обоснование методик и результаты контроля трития в НИИАРе. Ч.3. Выделение оксида трития из газовых сред с использованием синтетических цеолитов. Сборник трудов ФГУП ГНЦ РФ НИИАР, 2002, вып. 3, с. 64–74. ISBN 5-94831-219-4.

6. Рублевский В.П. Атомные электростанции как источник поступления ^{14}C в окружающую среду. Атомные электрические станции: сборник статей (под общ. ред. Л.М. Воронина), вып. 5. М.: Энергоатомиздат, 1983, с. 226–227.

7. Рыбин А.А., Ряскова М.В., Кушнер Ю.А. Разработка, метрологические исследования и аттестация методик измерения активности трития. Научный годовой отчет АО «ГНЦ НИИАР» за 2016 г. Димитровград, АО «ГНЦ НИИАР», 2017, с. 189–191. ISBN 978-5-94831-155-5.

8. Назаров Е.И., Кружалов А.В., Екидин А.А. и др. Приборы и методы измерения ^{14}C (обзор). *Приборы и техника эксперимента*. 2021;6:8–14. EDN: SEAKUM. DOI: <https://doi.org/10.31857/S0032816221060185>

Поступила в редакцию 28.01.2026

После доработки 27.04.2026

Принята к опубликованию 10.09.2026

Авторы

Рыбин Анатолий Алексеевич, ведущий научный сотрудник, к.т.н.,

E-mail: raa4svalka@yandex.ru

Ряскова Майя Владимировна, ведущий инженер

Серебряков Владимир Валерианович, заместитель главного инженера по безопасности, к.т.н.

UDC 621.039.766: 546.11

Methods and Results of Measurements of ^3H and ^{14}C Emission into the Atmosphere during Operation of the RIAR Research Nuclear Facilities

Rybin A.A., Ryaskova M.V., Serebryakov V.V.

RIAR JSC,

9 Zapadnoye Sh., 433510 Dimitrovgrad, Ulyanovsk reg., Russia

Abstract

To protect the environment and ensure the radiation safety of the population, RIAR JSC is improving the methodological aspects of monitoring the composition and activity of radioactive substances in technological media and waste from research nuclear installations and other radiation-hazardous facilities. Here is described the created system for monitoring the activity of genetically and globally dangerous ^3H (tritium) and ^{14}C (carbon-14) in a gas-aerosol mixture discharged through a high-altitude ventilation pipe. The selection of ^3H in the form of oxide is carried out on a zeolite sorbent, followed by extraction of tritium moisture in a thermal vacuum desorption unit. The isolation of ^{14}C in carbon dioxide is carried out by bubbling through an alkali solution and collecting a dry sample of barium carbonate. The selection of gaseous and volatile compounds ^3H and ^{14}C is carried out by the method of preliminary thermocatalytic oxidation inside an electric tubular furnace to tritium dioxide and carbon dioxide, which are immediately trapped from the flow in the adsorber and bubbler. The specific activities of ^3H and ^{14}C in the samples are measured by the liquid scintillation method. Here is presented the developed method of measuring the specific activity of ^{14}C directly in barium carbonate samples in a liquid scintillator in the form of emulsion, also optimal measurement conditions and metrological properties of loads on a Hidex SL300 radiometer are determined. The extended uncertainty of the results with a minimum measurable activity of 0.2 Bq/g

in the BaCO_3 sample does not exceed 23%. Here are given the actual values of ^3H and ^{14}C activity in emissions and the surface air layer at the location of the RIAR research nuclear facilities. The values of tritium emissions into the atmosphere in the previous 20 years ranged from 3.8 to 6 TBq per year, which is less than 1% of the permissible emissions. For the first time the integrated values of ^{14}C emissions given here over 5 years ranged from 40 to 70 GBq per year.

Keywords: tritium, carbon-14, control system, experiments, methods of selection, samples, radioactivity, measurement methods, emissions.

For citation: Rybin A.A., Ryaskova M.V., Serebryakov V.V. Methods and Results of Measurements of ^3H and ^{14}C Emission into the Atmosphere during Operation of the RIAR Research Nuclear Facilities. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2026;3:154–167. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2026.3.11> (in Russian).

References

1. Chechetkin Yu.V., Grachev A.F. Radioactive Waste Management. Samara, Samara House of Printing, 2000, 348 p. ISBN 5-7350-0304-6 (in Russian).
2. Rybin A.A., Rozhdestvenskaya L.N., Ryaskova M.V., Serebryakov V.V. Methods and Results of Monitoring Tritium Content in the Working Area Air and in Ventilation Gas-Aerosol Emissions. *Radiation Safety Issues*. 2009;3:22–32 (in Russian).
3. Order of the Government of the Russian Federation as of 20.10.2023 No. 2909-r (as amended on 05.06.2024) "On Approval of the List of Pollutants Subject to State Regulation Measures in the Field of Environmental Protection". Collected Legislation of the Russian Federation, 2023, no. 44, art. 7912. URL: <http://pravo.gov.ru> (accessed Feb. 09, 2026) (in Russian).
4. Rybin A.A., Ryaskova M.V., Baryshnikov S.G., Ilyina E. Development of a method for measuring carbon-14 activity in gas-air environments. Scientific Annual Report of RIAR JSC for 2023. Dimitrovgrad, RIAR JSC Publ., 2024, p. 222–225. ISBN 978-5-94831-219-4 (in Russian).
5. Rybin A.A., Rozhdestvenskaya L.N. Justification of Tritium Monitoring Methods and Results at RIAR. Part 3. Tritium Oxide Separation from Gas Media Using Synthetic Zeolites. Collection of Works of FSUE SSC RF RIAR, 2002, iss. 3, p. 64–74. ISBN 5-94831-219-4 (in Russian).
6. Rublevsky V.P. Nuclear Power Plants as a Source of ^{14}C Emissions into the Environment. Nuclear Power Plants: Collection of Articles (edit. by L.M. Voronin), iss. 5. Moscow, Energoatomizdat Publ., 1983, p. 226–227 (in Russian).
7. Rybin A.A., Ryaskova M.V., Kushnir Yu.A. Development, Metrological Studies and Certification of Methods for Measuring Tritium Activity. Scientific Annual Report of RIAR JSC for 2016. Dimitrovgrad, RIAR JSC Publ., 2017, p. 189–191. ISBN 978-5-94831-155-5 (in Russian).
8. Nazarov E.I., Kruzhalov A.V., Ekidin A.A., Vasyanovich M.E., Parkhomchuk V.V., Rastigeev S.A., Kalinkin P.N., Parkhomchuk E.V. Instruments and Methods for Measuring ^{14}C (Review). *Instruments and Experimental Techniques*. 2021;64(6):790–795. DOI: <https://doi.org/10.1134/S0020441221060166>

Authors

Anatolii A. Rybin, Leading Scientist, Cand. Sci. (Engineering),

E-mail: raa4svalka@yandex.ru

Maya V. Ryaskova, Leading engineer

Vladimir V. Serebryakov, Deputy Chief Engineer for Nuclear Safety, Cand. Sci. (Engineering)