

Поступление радиоактивного иода в атмосферу при нормальной эксплуатации АЭС

© А. А. Екидин^{*а}, К. Л. Антонов^а, М. Е. Васянович^а, И. А. Капустин^б, И. Ю. Филатов^б

^а Институт промышленной экологии УрО РАН, 620990, Екатеринбург, ул. Софьи Ковалевской, д. 20;
*e-mail: ekidin@ecko.uran.ru

^б Московский технологический университет, 119435, Москва, ул. Малая Пироговская, д. 1

Получена 14.05.2018, после доработки 03.07.2018, принята к публикации 10.07.2018 УДК 621:504.61:539.1.04

Проанализированы удельные показатели выброса в атмосферу изотопов иода при нормальной эксплуатации европейских и российских АЭС с различными типами реакторных установок. Показан асимметричный характер распределения вероятностей удельных показателей и тенденция к снижению их медианных значений. Выделены три категории АЭС с наилучшей, наихудшей и устойчивой практикой выбросов ^{131}I . Получена оценка текущего глобального поступления в атмосферу ^{129}I от всех АЭС в мире, равная 0.8 кБк/год. При увеличении совокупной установленной мощности АЭС до 632 ГВт, глобальное поступление ^{129}I от их выбросов возрастает до 1.4 кБк/год, что вдвое меньше скорости естественного образования этого нуклида при взаимодействии космических лучей с изотопами Хе в атмосфере. На основании выполненных измерений на отдельных АЭС России определен вклад аэрозольной и газообразных форм иода в суммарную объемную активность выбросов изотопов иода. В режиме нормальной эксплуатации доминирующую роль (65–85%) играют газообразные соединения иода.

Ключевые слова: радиоактивный иод, объемная активность, аэрозоль, газообразные соединения, удельный показатель выброса.

DOI: 10.1134/S0033831119030080

Введение

В мире 30 стран эксплуатируют более 400 ядерных реакторов на АЭС с общей электрической мощностью около 380 ГВт [1]. Ежегодно эти реакторы производят около 2410 ТВт·ч электроэнергии, что составляет около 11% от мирового объема. По оценкам МАГАТЭ, к 2030 г. суммарная мощность АЭС в мире достигнет 385–632 ГВт [2]. Любая стратегия производства электрической энергии на АЭС должна учитывать практическую пригодность мер по ограничению выбросов, сбросов и образования радиоактивных отходов. Снижение уровней воздействия на основе применения наилучших доступных технологий – широко используемый подход для борьбы с нерадиоактивными загрязняющими веществами. Разработку и обоснование способов минимизации радиационного воздействия на персонал, население и окружающую среду целесообразно выполнять с учетом «наилучших имеющихся технологий» реализации принципа ALARA (As Low As Reasonably Achievable) [3].

Среди сотен продуктов деления ядерного материала в топливе АЭС образуются десятки изотопов иода [4, 5]. В случае негерметичности оболочек твэлов радионуклиды поступают в теплоноситель, а из-за организованных и неорганизованных протечек возможно поступление в окружающую среду.

В технологических средах АЭС соединения изотопов иода претерпевают различные физико-химические превращения, и в источниках выбросов радиоактивный иод может присутствовать в аэрозольной форме или в виде органических и неорганических газообразных соединениях [4, 6].

Изотопы I с массовыми числами 123, 129, 131, 132, 133, 135 входят в перечень радионуклидов, в отношении которых применяются меры государственного регулирования в области охраны окружающей среды при выбросах в атмосферу [7]. По результатам оценок, ^{131}I входит в число основных дозообразующих радионуклидов при облучении населения от выбросов АЭС [3, 8–11]. Контроль радиоактивных изотопов иода в выбросах реакторных установок необходим для подтверждения непревышения установленных квот на облучение населения в соответствии с принципом ALARA, а также позволяет идентифицировать развитие нештатной ситуации. Выполненный в данном исследовании анализ показателей производства электроэнергии и выбросов радиоактивного иода АЭС Европы за период с 1995 по 2014 г. позволил выявить типы реакторов с наилучшей практикой применения методов и технологий, обеспечивающих наименьшее воздействие радиоактивного иода при штатной эксплуатации.

В нормативной документации по радиационной безопасности радиоактивный йод в выбросах рассматривается в двух физических формах – аэрозоли и газообразные химические соединения. На всех АЭС решена проблема контроля интегрального значения радиоактивного йода в выбросах. Методы контроля основаны на отборе пробы путем прокачивания воздуха через сорбент с последующим измерением счетного образца на радиометре или спектрометре γ -излучения. Такой способ контроля не позволяет оценить отдельно вклад в общую активность аэрозолей йода и его легко- и трудносорбируемых газообразных соединений. Средняя массовая концентрация йода в штатных выбросах ядерных реакторов не превышает 10^{-11} нг/л, что делает невозможным применение аналитических способов определения физико-химических форм. В то же время при определении дозовых нагрузок на население следует отдельно учитывать аэрозольную форму и газообразные соединения йода [4, 12]. В отсутствие этой информации консервативно принимается, что радиоактивный йод содержится в выбросе в форме газообразного элементарного йода I_2 . В этом случае из-за существенного различия дозовых коэффициентов происходит завышение расчетных доз облучения [13]: от аэрозолей ^{131}I в среднем в 2.5 раза (от 2.22 до 2.82 раз для различных возрастных категорий населения); от органических соединений ^{131}I в среднем в 1.3 раза (от 1.23 до 1.33 раза для различных возрастных категорий населения).

Газообразные соединения представлены легкосорбируемым элементарным йодом (I_2) и трудносорбируемыми органическими соединениями, преимущественно метилиодидом (CH_3I) [12, 14]. Вместе с тем известно, что радиолиз I_2 и CH_3I приводит к образованию различных газообразных соединений, наиболее распространенными из которых являются HI и INO_2 . Кроме того, возможно образование вторичных промежуточных частиц IO , I_2O_2 и IO_2 [15]. Опубликованные данные указывают на особую важность защиты от аэрозолей CsI и соединений I_2 , HI , NOI , CH_3I из сотен возможных соединений йода [6, 16]. Остается много неизвестных механизмов преобразования изотопов йода в формы и соединения на этапах перемещения от активной зоны реактора до внешней атмосферы. Выполненные в рамках представленного исследования измерения на отдельных АЭС России позволили определить, в какой форме радиоактивный йод присутствует в газовой смеси источников выбросов.

Цель данной работы – получить качественную и количественную характеристику поступления йода

в атмосферу при нормальной эксплуатации АЭС для последующей оценки радиоэкологической опасности выбросов йода и обоснования необходимости их нормирования. Задачи исследования:

1) на примере АЭС Европы выполнить сравнительный анализ поступления радиоактивного йода в атмосферу от различных типов реакторных установок для штатного режима эксплуатации;

2) на основе установленных удельных показателей выброса йода и соотношений изотопов йода в облученном топливе получить оценку текущего глобального поступления в атмосферу ^{129}I от всех АЭС в мире;

3) в ходе радиационно-технического обследования источников выбросов йода на российских АЭС определить вклад аэрозольной и газообразных форм йода в суммарную объемную активность его выбросов.

Статистическая обработка данных

Исследование поступления радиоактивного йода в атмосферу проведено на основе удельных показателей, рассчитанных как отношение величины суммарного годового выброса активности каждого изотопа йода к выработке электрической энергии на АЭС за этот же год. Удельный показатель является универсальной величиной, позволяющей сравнивать выбросы различных станций во времени независимо от их мощности. Размерность удельного показателя выбрана как $ГБк \cdot (ГВт \cdot ч)^{-1}$ для демонстрации масштаба выброса и производства энергии. Для расчета удельных показателей использованы данные МАГАТЭ о выработке электрической энергии на АЭС [17], а также отчетная информация Европейской комиссии и АО «Концерн Росэнергоатом» о годовых выбросах радионуклидов АЭС Европы [18] и России [19].

В базе данных Европейской комиссии содержатся сведения о газообразных выбросах радиоактивных изотопов ^{131}I , ^{133}I , ^{135}I четырьмя типами реакторных установок в 13 странах Европы за период с 1995 по 2014 гг. Данные по выбросам радионуклидов АЭС России основываются на результатах непрерывного контроля поступления в атмосферу ^{131}I . Большая часть результатов контроля объемной активности ^{131}I в источниках выбросов российских станций находится ниже порога детектирования (0.5 НПИ, НПИ – нижний порог измерения), поэтому данные отчетов о годовом выбросе могут быть значительно завышены в сравнении с реальными величинами поступления йода в атмосферу для большинства энергоблоков. Однако даже в таких

условиях фиксируемые значения выбросов иода создают лишь долю от установленной квоты облучения критической группы населения [19]. Приборы и методы контроля выбросов иода на АЭС России достаточны для подтверждения соблюдения установленных нормативов.

Предварительный анализ ежегодных данных о выбросах радиоактивного иода из всех типов реакторных установок показал наличие сильной правосторонней асимметрии в распределениях вероятностей удельных показателей. Поэтому проверка статистических гипотез в данном исследовании выполнена с использованием непараметрических методов. Корреляционные связи различных показателей, а также значимость (устойчивость) временных линейных тенденций оценены с помощью ранговых коэффициентов Спирмена [20]. Оценка значимости межгрупповых различий в распределениях удельных показателей и их медианных значений проведена методом рангового дисперсионного анализа для независимых выборок по критерию Краскела–Уоллиса [21].

Категории АЭС с наилучшей, наихудшей и устойчивой практикой выбросов в атмосферу изотопов иода определены по границам квартильных размахов распределений вероятностей удельных показателей (q_1 и q_3 – 25-я и 75-я процентиля соответственно), вычисленных по совокупности всех станций Европы за 20-летний период. По временным рядам ежегодных показателей $Q_{i,j}$, Гбк·(ГВт·ч)⁻¹, каждой i -й станции за j -й год присваивался ранг в зависимости от попадания в соответствующий квартиль:

$$\begin{aligned} R_{i,j} &= 1, \text{ если } Q_{i,j} \leq q_1, \\ R_{i,j} &= 2, \text{ если } q_1 < Q_{i,j} \leq q_3, \\ R_{i,j} &= 3, \text{ если } Q_{i,j} > q_3. \end{aligned} \quad (1)$$

Значения рангов R_i , усредненных за весь период наблюдений по каждой станции, косвенно указывают на частоту попадания $Q_{i,j}$ в соответствующие квартили и позволяют классифицировать АЭС по искомым категориям. Границы категорий по средним рангам определены экспертно и составляют 1–1.5 для наилучших ($Q_{i,j}$ чаще попадают в 1-й квартиль), 1.5–2.5 – для устойчивых (2-й и 3-й квартили) и 2.5–3 – для наихудших (преимущественно 4-й квартиль) практик.

Экспериментальная часть

Определение аэрозолей и газообразных соединений иода в газовой среде выполнялось одновременно с помощью сорбционно-фильт-

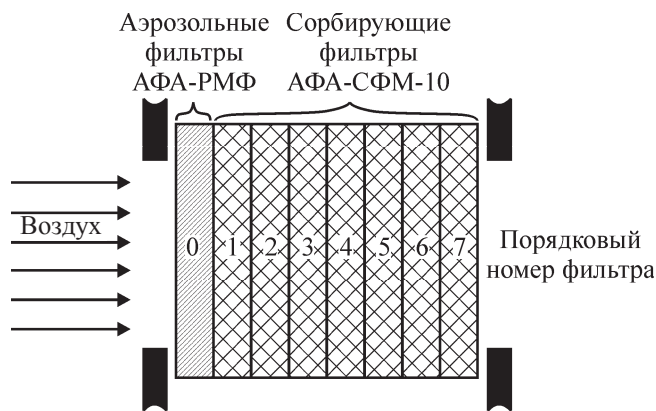


Рис. 1. Последовательность установки аэрозольного и угольных фильтров в пакете.

рующего материала, состоящего из пакета аэрозольного и угольных фильтров. Методы, средства измерения и последовательности действий соответствовали требованиям методики «Контроль объемной активности иода-131 в выбросах атомных станций», МТ 1.2.1.15.001.1051–2015 (Свидетельство об аттестации методики радиационного контроля N 45062.15205/RA.RU.311243 от 27.11.2015 г.). Данная методика внесена в Федеральный информационный фонд по обеспечению единства средств измерений N ФР.1.40.2016.22916.

Применение набора многослойного сорбционно-фильтрующего материала – наиболее частый прием в экспериментах по изучению сорбции различных химических соединений радиоактивного иода [4, 22–25]. Последовательность установки каждого фильтра в пакете показана на рис. 1. Установленный первым по воздушному потоку высокоэффективный аэрозольный материал АФА-РМВ (ТУ 228270-001-17826684–2014) не улавливает газообразный иод, но улавливает аэрозольную фракцию с эффективностью более 99% [26]. На первом слое угольного материала полностью улавливаются легкосорбируемые соединения иода и частично – трудносорбируемые. На остальных слоях угольного материала (со второго по седьмой) улавливаются только трудносорбируемые соединения. Для определения газообразных соединений иода применяли пакеты угольных фильтров с одинаковым количеством сорбирующего материала АФА-СФМ-10 (ТУ 2162-005-17826684–2015) с поверхностной плотностью сорбента в одном (каждом) фильтре 10 г/м². После отбора проб воздуха на каждом фильтре оценивали активность изотопов иода γ -спектрометрическим методом. Для обработки результатов измерений активность изотопов иода на каждом фильтре приводили к окончанию отбора пробы с учетом распада.

Опубликованные результаты исследований эф-

фективности улавливания трудносорбируемых соединений ^{131}I многослойными фильтрующими материалами демонстрируют экспоненциальную форму распределения активности по слоям [22, 25, 27, 28]. Это соответствует распределению Больцмана по энергиям молекул в газовой фазе, которое определяет количество ударяющихся молекул газа о поверхность сорбента и количество адсорбированных молекул [29]. В общем виде распределение активности трудносорбируемых соединений радиоактивного иода в последовательности одинаковых фильтров описывается уравнением [30–32]

$$A_n = B \exp(-\lambda n), \quad (2)$$

где A_n – активность трудносорбируемого соединения иода на фильтре n в пакете, Бк; B – показатель доли трудносорбируемого соединения иода, Бк; λ – показатель скорости гетерогенной реакции трудносорбируемого соединения иода, безразмерный; n – порядковый номер ($n \geq 1$) сорбирующего фильтра в пакете.

Установленные значения параметров B и λ в формуле (2) позволяют определить активность трудносорбируемых соединений иода (A) с учетом неуправляемой активности пакетом фильтров:

$$A = B / (\exp \lambda - 1). \quad (3)$$

Численные значения параметров B и λ экспоненциальной зависимости, описывающей распределение активности трудносорбируемых соединений радиоактивного иода в последовательности фильтров, рассчитывали методом наименьших квадратов по результатам измерения активности со 2-го по 7-й фильтр пакета. Активность на первом фильтре (A_1) исключали из расчета, так как кроме трудносорбируемых этот фильтр может содержать и легкосорбируемые соединения.

Однородность сорбируемой фракции иода может быть проверена по критерию, полученному на основе регрессионного анализа измеренных данных с использованием аппроксимирующей модели (2). Если на первом фильтре экспериментально обнаруживаются уровни активности, значимо превышающие соответствующие значения экспоненты при $n = 1$, фильтр, вероятно, содержит разнородные фракции иода. При этом необходимо учитывать неопределенность, обусловленную статистической ошибкой оценивания параметров модели или приборной погрешностью измерений. Критерием допустимого отклонения измеренного значения активности на первом фильтре от модельного [рассчитанного по формуле (2)] может служить 95%-ный доверительный интервал при $n = 1$, по-

строенный для линейной регрессии по логарифмированным данным ($\ln A_n = \ln B - \lambda n$, где $n = 2-7$). В общем виде в случае использования стандартной ошибки оценки S_e в качестве меры неопределенности доверительный интервал CI_n для прогнозируемого значения $\ln A_n$ при заданном значении n вычисляется по формулам

$$CI_n = (\ln B - \lambda n) \pm tS(\ln A_n), \quad (4)$$

где $S(\ln A_n)$ – стандартная ошибка прогнозируемого (среднего) значения $\ln A_n$ при заданном значении n :

$$S(\ln A_n) = S_e [N^{-1} + (n - \bar{n})^2 / \sum_{i=1}^N (n_i - \bar{n})^2]^{1/2}, \quad (5)$$

где N – число точек, включенных в модель (если проверяется первый фильтр из пакета, содержащего семь фильтров, то $N = 6$ и $i = 2-7$); t – критерий Стьюдента для двустороннего доверительного уровня 95% и числа степеней свободы $N - 2$; S_e – стандартная ошибка оценки:

$$S_e = \{(N - 2)^{-1} \sum [\ln A_i - (\ln B - \lambda n_i)]^2\}^{1/2}. \quad (6)$$

При использовании в качестве меры неопределенности приборной погрешности измерений $S_{\text{изм}}$ в формуле (5) следует заменить S_e на $S_{\text{изм}}$, формула (6) не применяется.

Установить численные значения параметров уравнения (2) можно при условии, если активность сорбированных на фильтрах изотопов иода превышает минимально детектируемую активность средства измерения.

Дальнейшее совершенствование метода многослойных фильтров возможно на основе применения современных сорбентов, способных эффективно поглощать любые химические формы радиоактивного иода независимо от влажности в широком диапазоне температур газовых сред. Результаты исследования новых сорбционно-фильтрующих материалов представлены в работах ряда авторов [26, 33].

Результаты и обсуждение

Характеристика удельных показателей выбросов изотопов иода в атмосферу при нормальной эксплуатации АЭС Европы

Анализ удельных показателей поступления радиоактивного иода в атмосферу проведен для 76 европейских АЭС за период 1995–2014 гг. на основе публичной информации Европейской комиссии [18]. С учетом пропусков в базе данных объем вы-

Таблица 1. Статистическое описание годовых удельных показателей выбросов изотопов иода АЭС Европы за период 1995–2014 гг. по данным Европейской комиссии [18]

Параметр	^{131}I	^{133}I	^{135}I
Число наблюдений N	901	474	117
Среднее, ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$	$1.39 \cdot 10^{-5}$	$4.69 \cdot 10^{-5}$	$1.43 \cdot 10^{-4}$
Стандартное отклонение SD, ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$	$1.06 \cdot 10^{-4}$	$3.47 \cdot 10^{-4}$	$4.25 \cdot 10^{-4}$
Медиана, ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$	$9.92 \cdot 10^{-7}$	$1.20 \cdot 10^{-6}$	$4.66 \cdot 10^{-6}$
Минимум, ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$	$4.24 \cdot 10^{-10}$	$7.41 \cdot 10^{-12}$	$3.83 \cdot 10^{-11}$
Максимум, ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$	$2.17 \cdot 10^{-3}$	$6.86 \cdot 10^{-3}$	$3.64 \cdot 10^{-3}$
Нижний квартиль q_1 , ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$	$2.27 \cdot 10^{-7}$	$6.06 \cdot 10^{-7}$	$5.44 \cdot 10^{-7}$
Верхний квартиль q_3 , ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$	$4.66 \cdot 10^{-6}$	$4.69 \cdot 10^{-6}$	$6.16 \cdot 10^{-5}$
Асимметрия (значение \pm ст. ошибка)	16.93 ± 0.08	16.66 ± 0.11	5.80 ± 0.22
Эксцесс (значение \pm ст. ошибка)	310.98 ± 0.16	317.79 ± 0.22	41.56 ± 0.44

борок по годовым удельным выбросам ^{131}I , ^{133}I , ^{135}I составил 901, 474 и 117 записей соответственно (табл. 1). По всем показателям заметно существенное (в 14–39 раз) превышение средних значений над медианными, что указывает на сильное отклонение распределений вероятностей исследуемых данных от нормальной кривой. Статистические оценки коэффициентов асимметрии и эксцесса являются положительными и высокозначимыми (с учетом доверительных интервалов превышают ноль), поэтому рассматриваемые выборочные распределения имеют длинную правую часть и острую вершину. Однако гипотезы о наиболее подходящих в данном случае законах распределения (экспоненциальном, логнормальном или степенном) были отклонены по критериям Колмогорова–Смирнова и χ^2 . При этом логарифмированные значения удельных показателей всех изотопов иода имеют форму распределений вероятностей, близкую к нормальной.

С учетом вышеизложенного наиболее корректной точечной оценкой организованных выбросов радиоактивного иода из источников АЭС является медиана, которая по сравнению со средним значением менее чувствительна к статистическим выбросам – редким аномально высоким значениям. Ранговый корреляционный анализ всей совокупности данных за 20-летний период показал, что удельные показатели по ^{131}I , ^{133}I и ^{135}I европейских АЭС сильно связаны друг с другом: парные коэффициенты корреляции Спирмена R варьируют в диапазоне 0.59–0.92, $p \ll 0.05$. Это может быть закономерным следствием физико-химических процессов в реакторных установках, но также может быть обусловлено тем, что в некоторых случаях выбросы ^{133}I и ^{135}I определяются расчетным путем по результатам измерений активности ^{131}I . Поэтому для описания качественной картины поступления в атмосферу изотопов иода при штатной эксплуатации АЭС достаточно рассмотреть, например, удельные показатели выбросов ^{131}I (табл. 2).

Основные закономерности и тенденции по другим изотопам с высокой вероятностью будут аналогичны.

Показано, что совокупные медианные значения годовых выбросов ^{131}I по 76 станциям монотонно снижаются в пределах от $2.36 \cdot 10^{-6}$ до $6.75 \cdot 10^{-7}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$. Относительно большие показатели выбросов в 1995–1999 гг. обусловлены отдельными АЭС Швеции и Нидерландов (Ringhals 1 и Dodewaard в 1995–1997 гг.). Их исключение из расчетов не дает принципиальных изменений: в этом случае совокупное значение медианы в 1995–1999 гг. составит $2.05 \cdot 10^{-6}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$.

Наименьшие выбросы ^{131}I характерны для реакторных установок типа PWR, наибольшие – для BWR независимо от страны размещения станции. Иными словами, уровень радиационного воздействия на атмосферный воздух при штатной работе АЭС определяется преимущественно конструкцией реактора и применяемой технологией, а не локальными механизмами регулирования и ограничения (нормирования) выбросов. В отдельных случаях меры по снижению выбросов могут оказаться эффективными даже для реакторов с заведомо высокими удельными показателями.

В среднем за весь исследованный период удельные выбросы ^{131}I из реакторов AGR и BWR на порядок величины больше, чем из реакторов PWR и ВВЭР. Даже с учетом высокой вариативности исходных данных эти различия статистически значимы на уровне $p \ll 0.05$, причем эффект сохраняется в течение всего времени (рис. 2). В качестве меры вариативности взят квартильный размах ($q_3 - q_1$) годовых значений удельных показателей в соответствующем временном интервале.

Тенденция к снижению уровней совокупных удельных показателей выбросов формируется, по видимому, за счет реакторов ВВЭР и частично BWR и AGR. Для станций с PWR медианные значения годовых выбросов практически не меняются. Кроме того, во всей выборке (без деления по типам реактор-

Таблица 2. Медианные значения годовых удельных выбросов ^{131}I , ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$, при нормальной эксплуатации АЭС 13 стран Европы в 1995–2014 гг. (Н/д – нет данных)

Страна	Тип реактора	Число станций	Временной интервал					Весь период
			1995–1999	2000–2004	2005–2009	2010–2014	Весь период	
Англия	AGR	13	$9.17 \cdot 10^{-6}$	$3.90 \cdot 10^{-6}$	$4.41 \cdot 10^{-6}$	$7.20 \cdot 10^{-6}$	$4.56 \cdot 10^{-6}$	
Англия	PWR	1	Н/д	$1.29 \cdot 10^{-5}$	$3.87 \cdot 10^{-6}$	$2.25 \cdot 10^{-6}$	$3.01 \cdot 10^{-6}$	
Бельгия	PWR	2	Н/д	Н/д	Н/д	Н/д	Н/д	
Болгария	ВВЭР	1	Н/д	Н/д	$3.95 \cdot 10^{-7}$	$3.69 \cdot 10^{-7}$	$3.82 \cdot 10^{-7}$	
Венгрия	ВВЭР	1	Н/д	Н/д	$2.86 \cdot 10^{-6}$	$2.51 \cdot 10^{-6}$	$2.73 \cdot 10^{-6}$	
Германия	BWR	5	$3.97 \cdot 10^{-6}$	$1.90 \cdot 10^{-6}$	$3.60 \cdot 10^{-6}$	$1.47 \cdot 10^{-6}$	$2.49 \cdot 10^{-6}$	
Германия	PWR	13	$7.82 \cdot 10^{-8}$	$3.53 \cdot 10^{-8}$	$3.15 \cdot 10^{-8}$	$7.17 \cdot 10^{-8}$	$6.19 \cdot 10^{-8}$	
Испания	BWR	2	$8.33 \cdot 10^{-6}$	$1.56 \cdot 10^{-5}$	$5.32 \cdot 10^{-5}$	$1.02 \cdot 10^{-5}$	$1.97 \cdot 10^{-5}$	
Испания	PWR	5	$5.93 \cdot 10^{-6}$	$1.85 \cdot 10^{-7}$	$1.04 \cdot 10^{-7}$	$1.64 \cdot 10^{-7}$	$3.56 \cdot 10^{-7}$	
Нидерланды	BWR	1	$2.27 \cdot 10^{-5}$	Н/д	Н/д	Н/д	$2.27 \cdot 10^{-5}$	
Нидерланды	PWR	1	$3.21 \cdot 10^{-6}$	$1.38 \cdot 10^{-6}$	$2.51 \cdot 10^{-7}$	$1.57 \cdot 10^{-7}$	$5.36 \cdot 10^{-7}$	
Словакия	ВВЭР	2	Н/д	$1.74 \cdot 10^{-4}$	$1.29 \cdot 10^{-6}$	$5.26 \cdot 10^{-8}$	$7.34 \cdot 10^{-8}$	
Словения	PWR	1	Н/д	$1.61 \cdot 10^{-6}$	$2.88 \cdot 10^{-6}$	$8.81 \cdot 10^{-7}$	$1.31 \cdot 10^{-6}$	
Финляндия	BWR	1	$1.37 \cdot 10^{-6}$	$1.27 \cdot 10^{-6}$	$1.02 \cdot 10^{-6}$	$1.18 \cdot 10^{-6}$	$1.23 \cdot 10^{-6}$	
Финляндия	ВВЭР	1	$4.38 \cdot 10^{-7}$	$2.96 \cdot 10^{-7}$	$9.04 \cdot 10^{-8}$	$3.65 \cdot 10^{-7}$	$2.06 \cdot 10^{-7}$	
Франция	PWR	19	Н/д	$1.20 \cdot 10^{-6}$	$5.61 \cdot 10^{-7}$	$5.88 \cdot 10^{-7}$	$6.75 \cdot 10^{-7}$	
Чехия	ВВЭР	2	Н/д	$1.10 \cdot 10^{-6}$	$1.73 \cdot 10^{-6}$	$1.27 \cdot 10^{-7}$	$8.24 \cdot 10^{-7}$	
Швеция	BWR	4	$2.20 \cdot 10^{-5}$	$1.05 \cdot 10^{-5}$	$4.39 \cdot 10^{-6}$	$3.67 \cdot 10^{-6}$	$6.60 \cdot 10^{-6}$	
Швеция	PWR	1	$1.41 \cdot 10^{-6}$	$7.02 \cdot 10^{-6}$	$2.29 \cdot 10^{-7}$	$1.94 \cdot 10^{-7}$	$5.92 \cdot 10^{-7}$	
Итого		76	$2.36 \cdot 10^{-6}$	$1.20 \cdot 10^{-6}$	$8.71 \cdot 10^{-7}$	$6.75 \cdot 10^{-7}$	$9.92 \cdot 10^{-7}$	

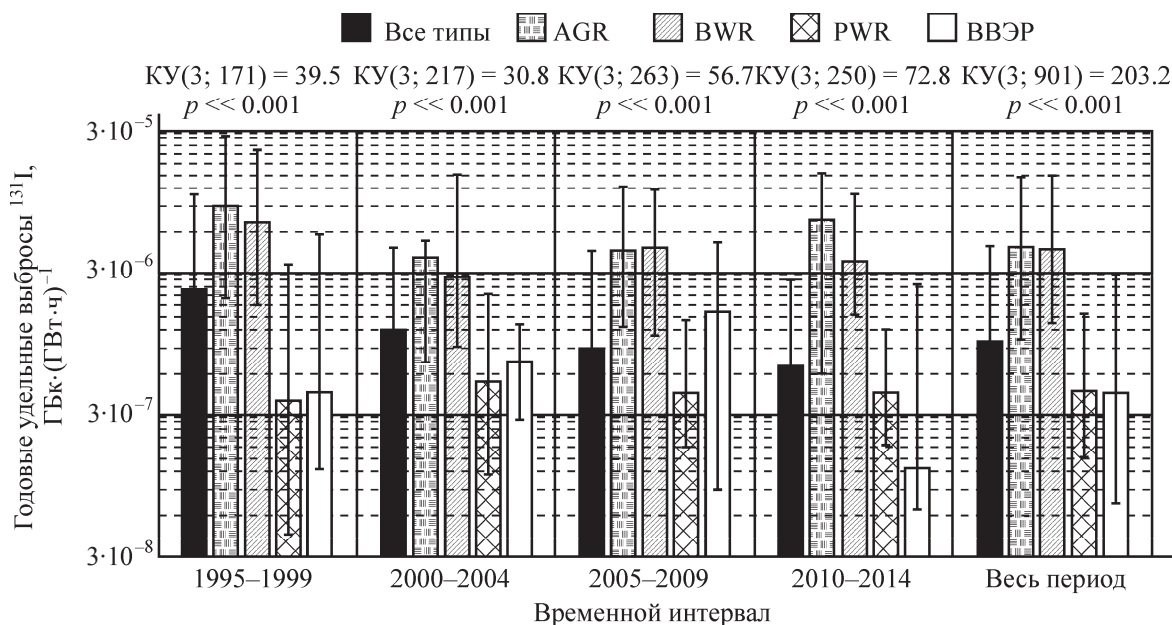


Рис. 2. Динамика медианных значений и квартильных размахов годовых удельных выбросов ^{131}I , ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$, в 1995–2014 гг. по типам реакторных установок. Ось ординат представлена в логарифмическом масштабе. Критерий Краскела–Уоллиса (КУ с числом степеней свободы) и значение p рассчитаны в каждом временном интервале для проверки нулевой гипотезы об отсутствии различий между типами реакторов по показателям выбросов.

ных установок) заметно снижение вариативности ежегодных данных. Здесь основным объясняющим фактором является динамика квартильного размаха выбросов PWR и в гораздо меньшей степени BWR. Для двух других типов реакторов динамика квартильных размахов не имеет выраженных тенденций.

Для оценки статистической значимости (устойчивости) линейных трендов в динамике выбросов по каждому типу реакторных установок были рассчитаны ранговые коэффициенты корреляций R Спирмена для зависимостей удельных показателей от времени (единица измерения – год).

Таблица 3. Результаты оценки линейных трендов в динамике удельных выбросов ^{131}I европейских АЭС в 1995–2014 гг.

Источник поступления	Число наблюдений N	R Спирмена	Значение p	Тренд ^a
Все АЭС Европы	901	-0.118	0.0004	Снижение
AGR	114	-0.100	0.2905	Отсутствует
BWR	209	-0.087	0.2098	Отсутствует
PWR	497	0.009	0.8405	Отсутствует
ВВЭР	81	-0.237	0.0332	Снижение

^a Уровень значимости тренда $\alpha = 0.05$.

Отрицательные коэффициенты указывают на устойчивое снижение годового показателя, положительные – на его рост (табл. 3).

Видно, что по всем АЭС Европы в целом за 20-летний период поступление в атмосферу активности ^{131}I незначительно, но устойчиво снижается. Выбросы из реакторов PWR находятся на стабильно низком уровне $\approx 4 \cdot 10^{-7}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$; для реакторов AGR и BWR характерны относительно высокие показатели [более $4 \cdot 10^{-6}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$], имеющие слабые статистически незначимые тенденции к снижению. Сведения о выбросах из установок ВВЭР в базе данных Европейской комиссии зарегистрированы в основном с 2004 г. (кроме станции Loviisa, Финляндия – с 1995 г.), но уже к 2014 г. обозначился статистически значимый тренд к снижению от $4.4 \cdot 10^{-7}$ до $1.3 \cdot 10^{-7}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$ в динамике удельных показателей выбросов ^{131}I для реакторных установок этого типа. Следует отметить, что установленные тренды могут объясняться как объективным, физическим сокращением выбросов, так и усовершенствованием методик контроля выбросов на организованных источниках в части снижения НПИ методов измерения.

Категории АЭС Европы с наилучшей, наихудшей и устойчивой практикой выбросов ^{131}I в атмосферу при нормальной эксплуатации

Несмотря на выявленные в среднем за период 1995–2014 гг. повышенные уровни поступления в атмосферу ^{131}I от установок AGR и BWR, достижение относительно небольших удельных показателей возможно на отдельных АЭС с реакторами такого типа. Об этом свидетельствуют результаты расчетов средних рангов, с помощью которых каждой европейской АЭС присвоена условная категория с наилучшей, наихудшей и устойчивой практикой выбросов (рис. 3). Расчет выполнен по формуле (1), значения квартильных границ q_1 и q_3 приведены в табл. 1. Величины R_i косвенно указывают на систематичность появления низких, средних и высоких значений удельных показателей $Q_{i,j}$ в регистрируемых ежегодных данных о выбросах i -й станции и позволяют дать сравнительные оценки применяемых практик за исследуемый период времени.

Так, в первой категории ожидаемо доминируют АЭС с реакторами PWR (13 из 16 станций) и ВВЭР (2 станции). Однако наилучшая практика также отмечена на станции Gundremmingen B+C (Германия) с реакторной установкой BWR. За 20 лет ее показатели выбросов изменялись в диапазоне от $7.4 \cdot 10^{-9}$ до $2.3 \cdot 10^{-6}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$ с преобладанием значений из первого квартиля. Наилучшие практики, как элемент наилучшей доступной технологии (НДТ), показывают практическую пригодность осуществляемых мер на АЭС с различными типами реакторных установок для ограничения выбросов радиоактивного иода при сопоставимых уровнях производства электроэнергии.

Реакторы BWR наряду с AGR нередко фигурируют и в категории «Устойчивые практики», их суммарный вклад составляет 20%. Это АЭС Англии, Германии, Финляндии и Швеции. Устойчивые практики обладают потенциалом развития процессов, установок или методов работы, которые позволяют ограничить выбросы иода без снижения производства электроэнергии.

В категорию «Наихудшие практики» отнесены исключительно установки AGR (Англия) и BWR (Германия, Испания, Швеция и Нидерланды), годовые показатели выбросов которых в основном превышают $4.66 \cdot 10^{-6}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$ (4-й квартиль) и значительно реже находятся в диапазоне 2-го и 3-го квартилей. Для снижения воздействия на окружающую среду АЭС этой категории требуется сокращение удельных показателей выброса иода на 1–2 порядка путем совершенствования системы очистки газоаэрозольных выбросов, контроля герметичности оболочек топлива и других инженерных методов.

Характеристика удельных показателей выбросов ^{131}I от АЭС России

Для сравнительной оценки поступающей в атмосферу активности ^{131}I от штатных выбросов АЭС России и их классификации по установленным в настоящем исследовании категориям европейских станций использованы данные АО «Концерн Росэнергоатом» о годовых удельных выбросах этого радионуклида за период 2005–2015 гг. (табл. 4). Удельные показатели для установок

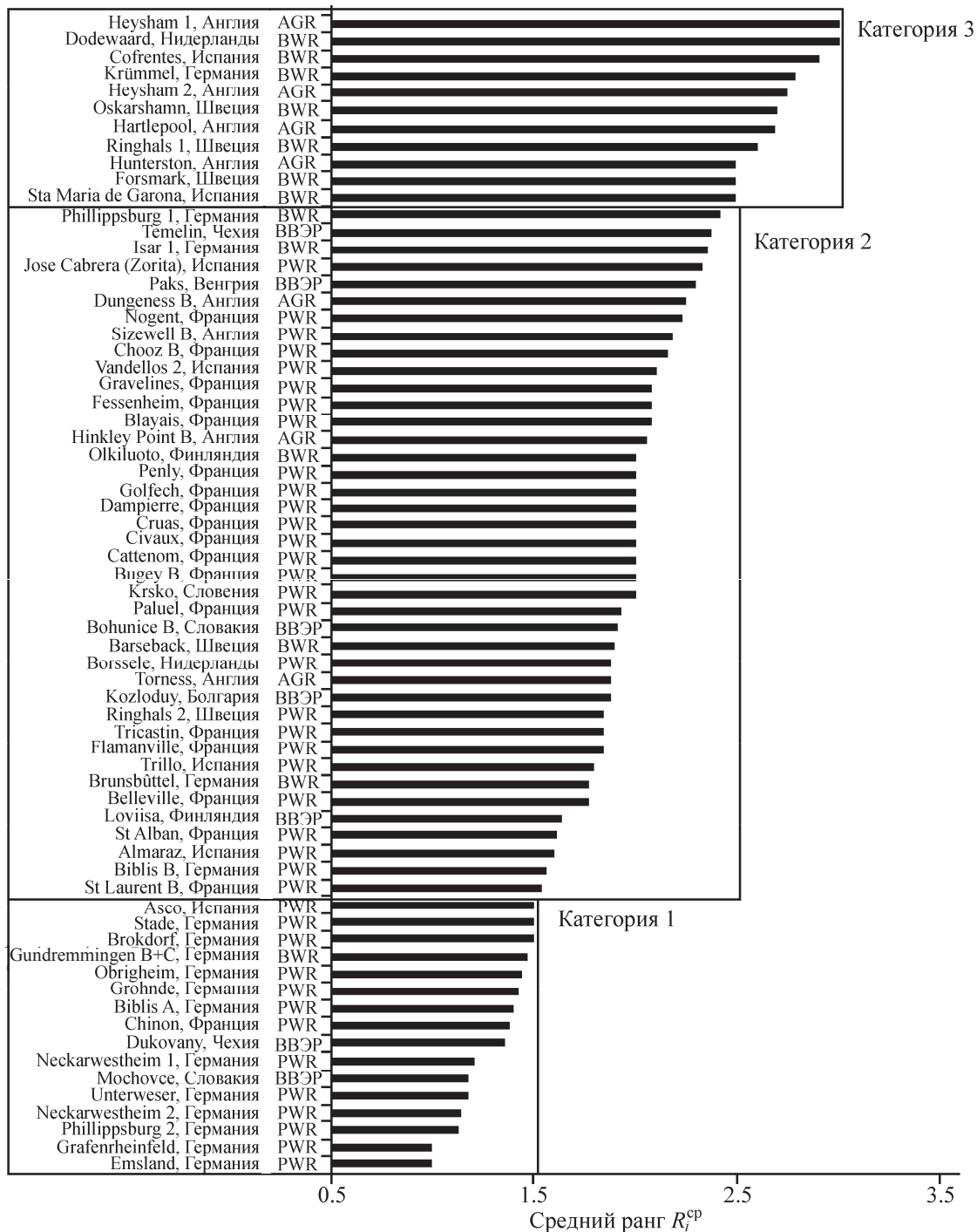


Рис. 3. Категории европейских АЭС по средним рангам годовых удельных выбросов Q_{ij}^{131I} за период 1995–2014 гг. Категория 3 – «наихудшие практики» [$Q_{ij} > 4.66 \cdot 10^{-6}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$]; по типам реакторов: AGR – 4 (36.4%), BWR – 7 (63.6%). Категория 2 – «устойчивые практики» [$2.27 \cdot 10^{-7} < Q_{ij} \leq 4.66 \cdot 10^{-6}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$]; по типам реакторов: AGR – 3 (7.5%), BWR – 5 (12.5%), PWR – 27 (67.5%), ВВЭР – 5 (12.5%). Категория 1 – «наилучшие практики» [$Q_{ij} \leq 2.27 \cdot 10^{-7}$ ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$]; по типам реакторов: BWR – 1 (6.3%), PWR – 13 (81.3%), ВВЭР – 2 (12.5%).

ВВЭР находятся в диапазоне значений соответствующего типа европейских станций на Балаковской, Кольской и Ростовской АЭС; на Калининской и Нововоронежской – на порядок величины больше.

Ни одна российская АЭС не попала в категорию 1 «Наилучшие практики» по причине высоких значе-

ний НПИ ($\sim 10^{-2}$ Бк/м 3) применяемых методов измерения активности иода в выбросах, которые гарантируют непревышение установленных нормативов поступления иода в атмосферу, но не позволяют измерить фактически низкие значения объемной активности. Вместе с тем, две АЭС в Европе с реакторными установками ВВЭР демонстрируют

Таблица 4. Медианные значения годовых удельных выбросов ^{131}I АЭС России в 2005–2015 гг. и их соответствие категориям европейских АЭС с наилучшими, устойчивыми и наихудшими практиками

АЭС России	Тип реактора	Годовой удельный выброс ^{131}I , ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$	Соответствие категории АЭС Европы
Балаковская	ВВЭР	$2.40 \cdot 10^{-6}$	2
Калининская	ВВЭР	$2.45 \cdot 10^{-5}$	3
Кольская	ВВЭР	$1.80 \cdot 10^{-6}$	2
Курская	РБМК	$9.34 \cdot 10^{-5}$	3
Ленинградская	РБМК	$1.26 \cdot 10^{-5}$	3
Нововоронежская	ВВЭР	$4.27 \cdot 10^{-5}$	3
Ростовская	ВВЭР	$7.00 \cdot 10^{-7}$	2
Смоленская	РБМК	$5.50 \cdot 10^{-6}$	3

наименьшие удельные показатели выбросов иода, и ни одна европейская АЭС с ВВЭР не попала в категорию 3 «Наихудшие практики» (рис. 3).

Для реакторов РБМК характерны повышенные уровни эмиссии в атмосферу ^{131}I , сопоставимые лишь с отдельными станциями типа ВВЭР (например, испанскими Sta Maria de Garona и Cofrentes). В перспективе вывод из эксплуатации АЭС РБМК и замещение их АЭС нового поколения ВВЭР-1200 и ВВЭР-ТОИ приведет к снижению поступления радиоактивного иода при сравнимом количестве вырабатываемой электроэнергии.

Поступление ^{129}I в атмосферу при нормальной эксплуатации АЭС

Полученные значения удельного показателя выброса ^{131}I позволяют консервативно оценить суммарную активность ^{129}I , поступающего в атмосферу от выбросов всех АЭС в мире при штатных условиях эксплуатации. Согласно справочным данным, максимальное отношение активностей ^{129}I и ^{131}I достигается к концу кампании. В зависимости от типа реакторной установки это отношение варьирует в диапазоне от $1.01 \cdot 10^{-8}$ до $5.50 \cdot 10^{-8}$ при среднем значении $2.52 \cdot 10^{-8}$ [5]. При таком соотношении активностей изотопов в топливе невозможно ожидать сдвиг на 8 порядков в сторону увеличения активности ^{129}I в штатных выбросах АЭС.

Принимая совокупное среднее значение удельного показателя выбросов ^{131}I равным 1.39×10^{-5} ГБк·(ГВт·ч) $^{-1}$ (табл. 1) и отношение активности ^{129}I к активности ^{131}I в выбросе равным $2.52 \cdot 10^{-8}$, для ежегодного производства электроэнергии в количестве 2410 ТВт·ч оценка поступления активности ^{129}I в атмосферу от выбросов атомных электростанций составит 0.8 кБк/год. В случае реализации сценария повышения глобальной установленной мощности АЭС до 632 ГВт (что соответствует производству ~4000 ТВт·ч электроэнергии в год) можно ожидать увеличения этого показателя до 1.4 кБк/год. Эта величина сопоставима с активностью ^{129}I , которая ежегодно создается естественным образом в атмосфере.

Изотоп ^{129}I возникает в атмосфере при взаимодействии космических лучей с изотопами Хе в ядерных реакциях типов $(p,2p)$, $(p,2pxn)$, (n,p) , (n,pkn) , где $x = 1, 2, 4, 6$, а $k = 1, 2, 3, 5, 7$. В опубликованных данных приведена скорость естественного образования ^{129}I , равная $1.4 \cdot 10^{-14}$ кг/с, что соответствует 2.9 кБк/год [4]. Таким образом, в настоящее время интенсивность глобального поступления ^{129}I в атмосферу от штатных выбросов АЭС в 3.6 раза меньше скорости естественного образования ^{129}I в атмосфере. Полученная оценка носит скрининговый характер и не дает в полном объеме представление о радиационном воздействии ^{129}I . Корректные значения радиационного риска от штатных выбросов АЭС могут быть получены с учетом локального характера эмиссии, типа реакторных установок и специфических условия размещения АЭС.

Физические формы и химические соединения иода в выбросах отдельных АЭС России

Для исследования форм нахождения изотопов иода в газовой смеси в источниках выбросов восьми АЭС России в 2017 г. в рамках радиационно-технического обследования выполнена серия отборов проб воздуха. Продолжительность отбора каждой пробы – не менее 24 ч; объем прокачанного воздуха через сорбционно-фильтрующий материал – $(0.9–2.5) \cdot 10^4$ м³. Несмотря на высокую производительность пробоотборных устройств и продолжительность отбора проб, детектируемые уровни содержания изотопов иода в источниках выбросов были зафиксированы только на Балаковской, Курской и Смоленской АЭС. Например, объемная активность ^{131}I для этих станций составила $1.74 \cdot 10^{-3}$, $6.42 \cdot 10^{-2}$ и $9.87 \cdot 10^{-3}$ Бк/м³ соответственно. Следует отметить, что в вентиляционной системе Балаковской АЭС иод обнаружен только в период проведения планово-предупредительных ремонта энергоблока N 2. В штатном режиме работы в вентиляционных системах всех четырех блоков Балаковской АЭС объемная активность ^{131}I была ниже порога измерения для применяемого метода – $2.5 \cdot 10^{-4}$ Бк/м³.

Таблица 5. Распределение активности ^{131}I по слоям сорбционно-фильтрующего материала в пробах воздуха на источниках выбросов АЭС России в 2017 г.

Слой	Материал	Улавливаемый компонент	Доля активности ^{131}I , %		
			Балаковская АЭС	Курская АЭС	Смоленская АЭС
0	РМВ	Аэрозольный иод	34.7	16.5	32.7
1	СФМ	Легко- и трудносорбируемые соединения иода	53.0	48.5	31.3
2	СФМ	То же	4.3	18.0	15.8
3	СФМ	» »	3.7	8.5	11.3
4	СФМ	» »	2.4	4.8	4.9
5	СФМ	» »	1.8	3.0	3.7
6	СФМ	» »	0.1	0.7	0.2

Таблица 6. Соотношение активностей ^{131}I (%) по физическими формам и химическим соединениям в пробах воздуха на источниках выбросов АЭС России

АЭС (тип реактора)	Аэрозоли, содержащие ^{131}I	Газообразные соединения ^{131}I		
		легкосорбируемые	трудносорбируемые	
			уловленные	неуловленные
Балаковская (ВВЭР) ^a	33.0	44.6	17.3	5.1
Курская (РБМК)	16.2	6.9	74.9	2.0
Смоленская (РБМК)	31.4	3.1	61.0	4.5

^a Установлено только в период планово-предупредительного ремонта энергоблока N 2.

Таблица 7. Соотношение активностей изотопов иода (%) по физическими формам и химическими соединениям в выбросах Курской и Смоленской АЭС

Изотоп иода	Аэрозоли, содержащие изотопы иода	Газообразные соединения иода	
		легкосорбируемые	трудносорбируемые
Курская АЭС			
^{132}I ($T_{1/2} = 2.3$ ч)	10	6	84
^{133}I ($T_{1/2} = 20.8$ ч)	14	Не обнаружено	86
^{134}I ($T_{1/2} = 52.5$ мин)	13	14	73
^{135}I ($T_{1/2} = 6.57$ ч)	12	21	67
Смоленская АЭС:			
^{133}I ($T_{1/2} = 20.8$ ч)	46	38	16

Результаты γ -спектрометрического анализа отобранных проб воздуха в вентиляционных системах АЭС, позволили получить распределение активности ^{131}I по слоям сорбционно-фильтрующего материала (табл. 5).

Вклад в суммарную активность ^{131}I аэрозольной фракции, поглощенной на 99% на первом фильтрующем материале РМВ, составил 16–35%. Для точного определения соотношений активностей газообразных легко- и трудносорбируемых соединений, уловленных на фильтрах СФМ, выполнены расчеты по формулам (2)–(6). Более подробно методика расчетов изложена в работах [30–32]. Конечные результаты измерений аэрозольной фракции и моделирования долей легко- и трудносорбируемых соединений, а также доли иода, не уловленной многослойным фильтром, обобщены в табл. 6. В условиях планово-предупредительного ремонта на АЭС с реакторными установками типа ВВЭР в воздухе вентиляционной системы преобладают легкоосорбируемые газообразные соединения иода. В штатных выбросах АЭС

РБМК доминируют трудносорбируемые газообразные соединения, а содержание легкоосорбируемых фракций не превышает 10%.

Полученные соотношения активности ^{131}I по формам и соединениям в газоаэрозольных выбросах АЭС позволяют определить кратность завышения консервативной оценки дозы облучения населения в сравнении с реальной дозой, если принять во внимание различия дозовых коэффициентов для аэрозолей (в 2.5 раза) и органических соединений (в 1.3 раза) этого изотопа. Для Балаковской АЭС оценка завышена в 1.33, для Курской АЭС – в 1.38, для Смоленской АЭС – в 1.51 раза.

В ходе радиационно-технического обследования в выбросах некоторых АЭС кроме ^{131}I были идентифицированы и другие изотопы иода. Так, на энергоблоках второй очереди Курской АЭС обнаружены ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I ; на Смоленской АЭС – ^{133}I . Соотношение активностей этих изотопов по физическими формам и химическим соединениям представлено в табл. 7.

Видно, что для радиоактивных изотопов иода Курской АЭС наиболее вероятное процентное соотношение объемной активности трудно-, легкосорбируемых соединений и аэрозолей составляет 78 : 10 : 12. Для Смоленской АЭС заметно повышение доли аэрозольной фракции, но суммарный вклад газообразных соединений более 50%.

В целом полученные соотношения активностей аэрозоль/газ для представленных изотопов иода в выбросах российских АЭС хорошо согласуются с ранее опубликованными результатами измерений в различных местах атмосферы северного полушария, которые указывают на значительное преобладание (65–85%) газообразной формы [6, 23, 30].

Заключение

Анализ данных Европейской комиссии за 1995–2014 гг. о поступлении радиоактивного иода в атмосферу в результате нормальной эксплуатации АЭС показал, что наименьшие выбросы характерны для реакторных установок PWR и ВВЭР, удельные показатели по которым на порядок величины меньше, чем для AGR и BWR. Вместе с тем в отдельных случаях меры по снижению радиоактивных выбросов могут оказаться эффективными даже для реакторов с заведомо высокими удельными показателями. Среди АЭС с наилучшими и устойчивыми практиками нередко встречаются станции с реакторами AGR и BWR, но основной вклад в эти категории вносят реакторы PWR.

Наблюдается устойчивая тенденция к снижению медианных значений и квартильных размахов годовых выбросов ^{131}I по отдельным типам реакторных установок в Европе. Среди российских АЭС повышенные уровни эмиссии в атмосферу ^{131}I характерны для реакторов РБМК, сопоставимые с выбросами отдельных европейских реакторов типа BWR. Российские реакторные установки ВВЭР в Европе не попали в категорию «Наихудшие практики», а две демонстрируют наименьшие удельные показатели выбросов иода. АЭС с ВВЭР в России и Европе преимущественно находятся в категории «Устойчивые практики» по удельному показателю штатных выбросов ^{131}I . Ожидаемый в перспективе вывод из эксплуатации АЭС РБМК и замещение их на установки нового поколения ВВЭР-1200 и ВВЭР-ТОИ приведет к снижению поступления радиоактивного иода при сопоставимом количестве вырабатываемой электроэнергии.

Оценка текущего глобального поступления в атмосферу изотопа ^{129}I при нормальной эксплуатации всех атомных станций мира составляет 0.8 кБк/год. При увеличении установленной мощности АЭС с

380 до 632 ГВт глобальное поступление ^{129}I от выбросов возрастет до 1.4 кБк/год, что вдвое меньше естественного образования этого радионуклида при взаимодействии космических лучей с изотопами ксенона в атмосфере (2.9 кБк/год).

Для российских АЭС ВВЭР при нормальных условиях эксплуатации значения активности иода в выбросах находятся ниже порога измерения 2.5×10^{-4} Бк/м³. В короткие периоды выполнения планово-предупредительного ремонта в выбросах этих станций может быть обнаружен ^{131}I на уровне 10^{-3} Бк/м³. При этом преобладают легкосорбируемые газообразные соединения (45%) и аэрозоли (33%) иода. В выбросах АЭС РБМК объемная активность ^{131}I может находиться в диапазоне от 10^{-3} до 10^{-2} Бк/м³. Отмечается малая доля легкосорбируемых соединений иода (3–7%) и значительная часть трудносорбируемых (65–77%). Доля ^{131}I в форме аэрозолей составляет 16–31%.

Определение физических форм и химических соединений изотопов иода в воздухе вентиляционной системы реакторной установки позволяет обоснованно преодолеть консервативный подход в оценке радиационного воздействия при нормировании выброса. С учетом различий в дозовых коэффициентах для форм и соединений ^{131}I в выбросах АЭС определено завышение консервативной оценки дозы в сравнении с реальной дозой: для Балаковской АЭС на 33.3, для Курской АЭС на 37.9, для Смоленской АЭС на 51.4%.

Отказ от консервативного подхода в полной мере соответствует принципу ALARA, поскольку позволяет устанавливать допустимый выброс иода на уровне, приемлемом как для предприятия при его нормальной работе, так и для населения и окружающей среды с учетом местных условий, путей облучения, достигнутого уровня культуры производства.

Список литературы

- [1] *Indicators for Nuclear Power Development*: IAEA Nuclear Energy Ser. Vienna: IAEA, 2015. N NG-T-4.5. 93 p.
- [2] *Energy, Electricity and Nuclear Power Estimate for the Period up to 2050*: IAEA Reference Data Ser. Vienna: IAEA, 2015. N 1. 53 p.
- [3] *Екидин А. А., Васильев А. В., Васянович М. Е.* // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. 2017. N 2 (18). С. 67–74.
- [4] *Стьоро Б. И., Недвецкайте Т. Н., Филистович В. И.* Изотопы иода и радиационная безопасность. СПб.: Гидрометеиздат, 1992. 255 с.
- [5] *Колобашкин В. М., Рубцов П. М., Ружанский П. М., Сидоренко В. Д.* Радиационные характеристики ядерного топлива: Справ. М.: Энергоатомиздат, 1983. 384 с.
- [6] *Кулюхин С. А.* // Успехи химии. 2012. Т. 81, N 10. С. 960–982.

- [7] *Перечень* загрязняющих веществ, в отношении которых применяются меры государственного регулирования в области охраны окружающей среды: Распоряжение Правительства РФ N 1316-р от 08.07.2015. М., 2015.
- [8] Екидин А. А., Жуковский М. В., Васянович М. Е. // Атом. энергия. 2016. Т. 120, N 2. С. 106–108.
- [9] Линге И. И., Панченко С. В., Горелов М. М. // АНРИ. 2017. N 1. С. 12–19.
- [10] Пышкина М. Д. // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. 2017. N 2 (18). С. 98–107.
- [11] Спиридонов С. И., Карпенко Е. И., Шарпан Л. А. // Радиационная биология. Радиэкология. 2013. Т. 53, N 4. С. 401–410.
- [12] *Обращение* с газообразными радиоактивными отходами. Требования безопасности. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии: НП-021-15. М.: НТЦ ЯРБ, 2015.
- [13] *Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: Int. Basic Safety Standards: IAEA Safety Standards Ser.* Vienna: IAEA, 2011. N GSR, part 3. 471 p.
- [14] *Рекомендуемые* методы расчета параметров, необходимых для разработки и установления нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферный воздух. Руководство по безопасности при использовании атомной энергии: РБ-106-15. М.: НТЦ ЯРБ, 2015. 95 с.
- [15] Dickinson S., Bowskill S., Sims H. E. // Int. Iodine Workshop: Full Proc. NEA/CSNI/R(2016)5. 2016. P. 243–255.
- [16] Trincal J., Cantrel L., Cousin F. et al. // Int. Iodine Workshop: Full Proc. NEA/CSNI/R(2016)5. 2016. P. 405–411.
- [17] *The Database on Nuclear Power Reactors // The Power Reactor Information System (PRIS) of the IAEA.* <https://www.iaea.org/pris/> (дата обращения: 01.02.2018).
- [18] *Radioactive Discharges Database // The Information on Radioactive Discharges of the European Commission.* <http://europa.eu/radd/nuclideDischargeOverview.do?pageID=NuclideDischargeOverview> (дата обращения: 01.02.2018).
- [19] *Отчет* об экологической безопасности // Официальный сайт АО «Концерн Росэнергоатом». <http://report2015.rosenergoatom.ru/#/eco-report/> (дата обращения: 01.02.2018).
- [20] Кобзарь А. И. Прикладная математическая статистика. М.: Физматлит, 2006. 816 с.
- [21] Kruskal W. H., Wallis W. A. // J. Am. Stat. Assoc. 1952. Vol. 47, N 260. P. 583–621.
- [22] Борисов Н. Б. // АНРИ. 2000. N 4. С. 4–13.
- [23] Будыка А. К., Борисов Н. Б. Волокнистые фильтры для контроля загрязнения воздушной среды. М.: ИздАТ, 2008. 360 с.
- [24] Корниенко В. И., Амелогова Н. И., Крупенникова В. И. // Радиохимия. 2004. Т. 46, N 6. С. 559–563.
- [25] Крицкий В. Г., Амелогова Н. И., Крупенникова В. И. и др. // Атом. энергия. 2004. Т. 97, N 6. С. 457–464.
- [26] Капустин И. А., Филатов Ю. Н., Филатов И. Ю., Рагуткин А. В. // Вопр. радиац. безопасности. 2016. N 3. С. 37–42.
- [27] Кулемин В. В., Михеев Н. Б., Лавриков В. А. и др. // Радиохимия. 2014. Т. 56, N 1. С. 41–45.
- [28] Кулюхин С. А., Румер И. А., Мизина Л. В. и др. // Радиохимия. 2017. Т. 59, N 1. С. 71–75.
- [29] Ягдовский В. Д. Адсорбция. М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2015. 216 с.
- [30] Екидин А. А., Васянович М. Е., Капустин И. А., Филатов И. Ю. // Вопр. радиац. безопасности. 2016. N 3 (83). С. 17–24.
- [31] Екидин А. А., Васянович М. Е., Марков Д. В. et al. // At. Energy. 2017. Vol. 121, N 4. P. 308–311.
- [32] Екидин А. А., Васянович М. Е., Антонов К. Л. et al. // Phys. At. Nuclei. 2018. Vol. 81, N 10. P. 1494–1498.
- [33] Епимахов В. Н., Москвин Л. Н., Четвериков В. В. и др. // Радиохимия. 2018. Т. 60, N 3. С. 265–268.