

УДК 546.11.02.3

## Определение выбросов трития методом накопления

**В. Г. Киселёв, А. Ю. Кожевников, Л. К. Поротников,  
А. С. Хапов**

Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики  
им. Н. Л. Духова, г. Москва, Россия  
vniia4@vniia.ru

*Описана методика измерения содержания трития в молекулярной форме и в виде оксида в организованном выбросе в окружающую среду от объекта, осуществляющего работы с тритием. Методика позволяет измерять газообразные выбросы от 0,45 МБк.*

### Введение

Согласно [1] контроль выбросов радиоактивных веществ из нормируемых источников рекомендуется осуществлять в отношении тех радионуклидов, для которых в соответствии с [2] должны устанавливаться нормативы предельно допустимых выбросов (ПДВ). Поэтому для любой организации, ведущей работы с тритий содержащими материалами (ТСМ), измерение содержания трития в выбросной трубе (ВТ) или отдельных вентиляционных системах (ВС) является актуальной задачей.

Обычно измерение выброса проводят следующим образом: в отобранной из ВТ или ВС пробе воздуха непрерывно измеряют объемную активность трития (ОАТ), которую интегрируют по времени за период наблюдения. При этом, как правило, раздельно измеряют объемную активность элементарного трития (НТ), его оксида (НТО) и аэрозолей.

Для определения ОАТ в режиме реального времени (*on-line*) широко используются ионизационные камеры (ИК), которые имеют своим недостатком сравнительно низкую чувствительность к тритию, что при малых значениях выбросов приводит к большим погрешностям (неопределенностям) измерений.

Выделение оксида и аэрозолей трития из воздушного потока проводят методом отбора проб одним из известных способов (вымораживание, сорбция жидкими или твердыми поглотителями влаги и пр.). Измерение активности

трития в этих пробах проводят методом жидко-сцинтилляционного счета (ЖСС).

В настоящей статье описана методика определения выбросов трития через ВТ методом барботирования. Статья может быть интересна для работников, занимающихся вопросами радиационной безопасности при работе с тритием и его соединениями.

## Измерение выброса при помощи ионизационных камер

На рис. 1 представлена упрощенная схема измерения выброса трития через выбросную трубу с использованием ионизационных камер. Схема заимствована из [3]. На схеме приняты следующие обозначения:  $d$  – диаметр выбросной трубы,  $\Phi$  – аэрозольный фильтр,  $P$  – ротаметр, ИК<sub>*i*</sub> ( $i = 1, 2$ ) – ионизационные камеры (радиометров трития), И<sub>*i*</sub> ( $i = 1, 2$ ) – измерительные блоки (радиометров трития), Н<sub>*i*</sub> ( $i = 1, 2$ ) – накопители информации (радиометров трития), Л – ловушка паров воды, ПУ – прокачивающее устройство (воздуходувка).

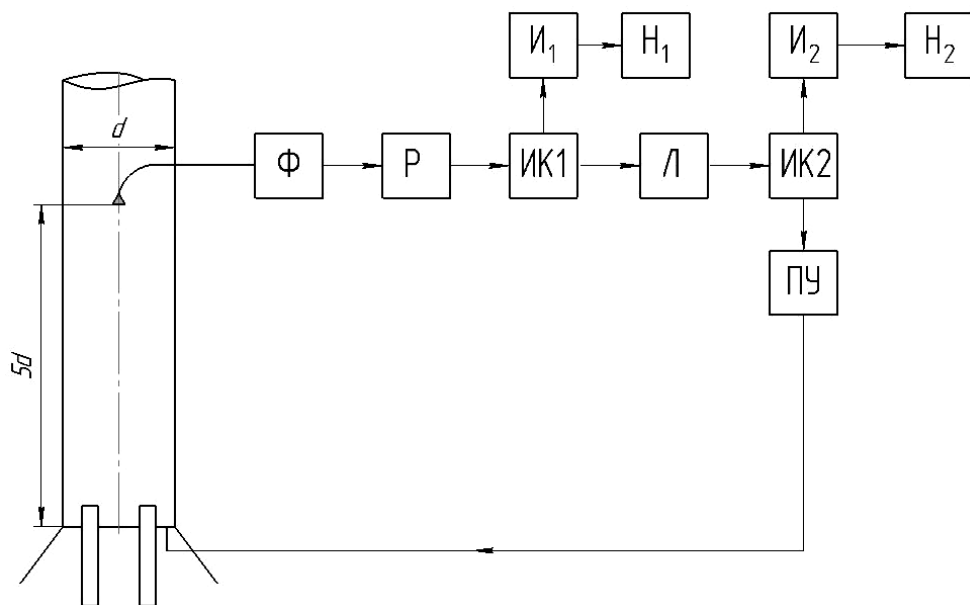


Рис. 1. Упрощенная схема измерения выброса трития с использованием ИК

В заборное устройство, установленное на расстоянии не менее пяти диаметров вентиляционной трубы ( $d$ ) от места ввода воздухопроводов, проба воздуха засасывается при помощи пробоотборного устройства и последовательно прокачивается через фильтр и ионизационные камеры (1 и 2). Расстояния  $5d$  достаточно для перемешивания воздуха из воздухопроводов и установления рав-

номерного потока по сечению трубы. Фильтр задерживает аэрозольные частицы, не задерживая газообразные примеси. После прохождения обеих ИК проба воздуха возвращается в ВТ. Измерительные устройства ( $I_i$ ) преобразуют токи ионизационных камер в объемную активность (ОАТ) трития в воздухе пробы, а накопители – позволяют хранить измеренные величины в цифровом формате.

Как правило [3] в выбросах газообразный тритий присутствует в двух химических формах: молекулярной ( $T_2$  или  $TH$ ) и в виде оксида ( $T_2O$  или  $HTO$ ). Измерение содержания трития в аэрозолях в данной статье не рассматривается. Камера  $ИК_1$  измеряет ОАТ обеих форм газообразных примесей суммарно, в то время как камера  $ИК_2$  – ОАТ только молекулярной составляющей выброса. В качестве ловушки паров воды может использоваться любой известный эффективный поглотитель влаги в рабочем диапазоне температур внешней среды (например, молекулярные сита, олеум – концентрированная серная кислота, криогенные устройства и пр.).

Существенным является выполнение требования идентичности ОАТ в выбросной трубе и отобранной для измерения пробе. В этом случае значение активности выброса трития  $A_B^\tau$  [Бк] за период времени  $\tau$  через выбросную трубу рассчитывают [3] по формуле:

$$A_B^\tau = \int_0^\tau C_B(t) \omega_B(t) dt, \quad (1)$$

где  $C_B(t)$  – мгновенная ОАТ в выбросе,  $\omega_B(t)$  – мгновенная объемная скорость воздушного потока в трубе,  $\tau$  – продолжительность наблюдения. При постоянной объемной скорости потока  $\omega_B(t) = \text{const}$  формула (1) упрощается:

$$A_B^\tau = \omega_B \int_0^\tau C_B(t) dt = \omega_B \bar{C}_B^\tau \tau = V_B^\tau \bar{C}_B^\tau, \quad (2)$$

где  $V_B^\tau = \omega_B \tau$  – расход (объем) воздуха через выбросную трубу за период наблюдения,  $\bar{C}_B^\tau = \int_0^\tau C_B(t) dt$  – средняя за период наблюдения ( $\tau$ ) ОАТ. Таким образом, определение выброса трития можно выполнить косвенным методом по двум измеряемым величинам:

– средней за период наблюдения ОАТ в удаляемой через ВТ воздушной среде;

– расходу воздуха через эту трубу за этот же промежуток времени.

Влияние чувствительности ИК на неопределенность измерения выброса можно проиллюстрировать на примере. Предположим, что объемная скорость воздушного потока в выбросной трубе постоянна и равна  $10\,000 \text{ м}^3/\text{ч}$ , а измерение ОАТ проводят при помощи установки радиометрической УДГБ-01Т (изготовитель ООО «НПП «Доза», Россия). Предположим также, что в течение всего года (период наблюдения  $\tau = 8760 \text{ ч}$ ) установка радиометрическая

регистрировала ОАТ на уровне собственного фона прибора, т. е. регистрировала отсутствие выброса трития. Вместе с тем значение выброса, рассчитанное по формуле (2) для приведенных исходных данных, равно 4,4 ТБк/год (120 Ки/год), но прибор этот выброс просто «не видит», так как он (выброс) находится за пределами чувствительности прибора. Если для предприятия установлен допустимый выброс (ДВ) на уровне 0,4 ПБк (10 кКи), то доля рассчитанного выше «не видимого» выброса находится на уровне 1 %. Если же ДВ равен, например, 19 ТБк (500 Ки), то вклад не регистрируемого выброса составляет 24 %.

## Метод накопления

В настоящей статье рассматривается способ определения выброса трития методом накопления, имеющем более высокую чувствительность по сравнению с методом, использующим ИК. Накопленный за период наблюдения тритий измеряют методом жидкосцинтилляционного счета (ЖСС), поэтому тритий необходимо предварительно экстрагировать из воздушного потока и перевести в жидкую фазу. Поскольку расход воздуха в выбросной трубе обычно большой (сотни кубических метров в час), тритий можно экстрагировать только из представительной пробы воздуха, отобранной из трубы. Представительная проба в данном случае подразумевает, что ОАТ в ней и в ВТ, из которой определяют выброс трития, в точности совпадают. Недостатком метода накопления является его периодический характер, т. е. невозможность наблюдения выброса в режиме реального времени.

Алгоритм измерения трития методом накопления выглядит следующим образом. За период наблюдения одновременно проводят: 1) измерение расхода воздуха через выбросную трубу и 2) отбор пробы воздуха из этой же трубы, объем которой (пробы) также измеряют. Из отобранной пробы воздуха тем или иным способом извлекают (экстрагируют) тритий (под тритием в данном случае подразумевается его элементарная и окисленная форма). Дальнейшие усилия, находящиеся уже за рамками периода наблюдения, направлены на измерение количества экстрагированного трития методом ЖСА. По измеренным значениям активности экстрагированного из пробы трития и объема пробы определяют ОАТ в пробе. Так как ОАТ в пробе в точности равен ОАТ в ВТ (см. выше), выброс трития рассчитывается по формуле (2), в которой  $\bar{C}_B^T = \text{ОАТ пробы}$ .

На рис. 2 представлена условная схема отбора пробы из воздуха вентиляционного выброса для экстрагирования трития.

На рис. 2 обозначены: Р – расходомер воздуха; ВД – воздуходувка;  $\omega_{\Pi}$  – объемная скорость прокачивания пробы воздуха.

Экстрагирование трития из воздуха можно проводить одним из известных способов, описанных, например, в [4]. В настоящей статье рассмотрен способ извлечения трития методом барботирования воздуха через дистиллированную воду.

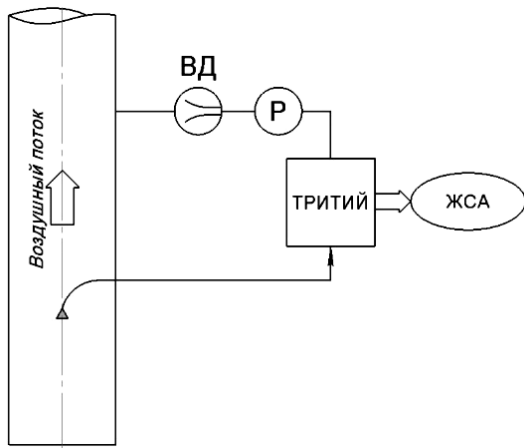


Рис. 2. Схема отбора пробы воздуха из вентиляционного выброса для экстрагирования трития и последующего ЖСА

Объемная активность трития в выбросе  $\bar{C}_B$  складывается из двух слагаемых:

$$\bar{C}_B = \bar{C}_{НТО} + \bar{C}_{НТ}, \quad (3)$$

где  $\bar{C}_{НТО}$  – средняя объемная активность трития в виде оксида,  $\bar{C}_{НТ}$  – средняя объемная активность трития в элементарной форме. Так как газообразный водород (в отличие от его окисленной формы) в воде практически не растворяется, барботирование проводят в два этапа. На первом этапе в барботере происходит поглощение оксида трития, после чего проба воздуха пропускается через катализатор, на котором происходит окисление элементарного трития. Проба воздуха с образовавшимся в катализаторе оксидом трития проходит через второй барботер, где происходит поглощение вновь образовавшегося оксида.

## Модель измерений

Дифференциальное уравнение для активности НТО в барботере ( $A_B$ ) имеет следующий вид [5]:

$$A_B/dt = a_1 - a_2, \quad (4)$$

где  $a_1$  – активность НТО, поглощаемая барботером из прокачиваемой пробы воздуха;  $a_2$  – активность НТО, уносимая из барботера с парами воды. При полном улавливании НТО в барботере и 100-процентном насыщении выходящего из него воздуха  $a_1$  и  $a_2$  можно определить следующим образом:

$$a_1 = C_{НТО}\omega_B, \quad (5)$$

где  $\omega_B$  – объемная скорость потока воздуха пробы, проходящей через барботер;

$$a_2 = \frac{A_B(t)}{m(t)} F \omega_B = \frac{A_B(t) F \omega_B}{m_0 - F \omega_B (1-f)t}, \quad (6)$$

где  $m_0$  и  $m_t$  – масса воды в барботере соответственно в начале наблюдения и в момент времени  $t$  после начала прокачки пробы воздуха через барботер;  $F$  – удельное содержание влаги в воздухе, выходящем из барботера;  $f$  – относительная влажность воздуха в пробе, на входе в барботер (т. е. влажность воздуха в воздуховоде вентиляционной системы). Для начальных условий  $t = 0$ ,  $A_B = 0$ ,  $0 < f < 1$  с учетом (5) и (6) уравнение (4) имеет решение:

$$C_{НТО} = C_{НТО}^B m_0 / (\beta \omega_B t), \quad (7)$$

$$\text{где } \beta = \frac{1 - [1 - (1-f)\lambda t]^{1-f}}{f\lambda t}, \quad \lambda = F/m_0.$$

При определенных условиях ( $\lambda t \ll 1$  или  $m_0 \gg F \omega_B t$ ) параметр  $\beta \approx 1$ . В этом случае активность трития в барботере ( $A_B = C_{НТО}^B m_0$ ) будет прямо пропорциональна активности НТО в пробе воздуха.

Полагая в (7)  $t = \tau$ , имеем, что при выполнении требования

$$m_0 \gg F \omega_B \tau, \quad (8)$$

ОАТ в воздухе пробы можно рассчитать по формуле:

$$C_{НТО} = C_{НТО}^B m_0 / (\omega_B \tau). \quad (9)$$

Таким образом, среднюю за период наблюдения ОАТ в воздуховоде вентиляционной системы ( $\bar{C}_{НТО}$ ), зная расход воздуха через барботер ( $\omega_B \tau$ ), можно определить измерением содержания накопившегося за период наблюдения трития в жидкой фазе барботера ( $A_B^\tau$ ), применив ЖСА.

$$A_B^\tau = m_0 \frac{A_{II}}{m_{II}} = A_{II} \left( \frac{m_0}{m_{II}} \right), \quad (10)$$

где  $A_{II}$  и  $m_{II}$  – соответственно активность трития (НТО) и масса пробы воды из барботера ( $m_0$  – масса воды в барботере в начале наблюдения) при проведении ЖСА. Следовательно, ОАТ в воздухе пробы ( $C_{НТО}^{II}$ ) равна

$$C_{НТО}^{II} = \frac{A_B^\tau}{\omega \tau}. \quad (11)$$

Принимая во внимание тот факт, что ОАТ в пробе и ОАТ в воздуховоде ВТ равны ( $C_{НТО}^{\Pi} = C_{НТО}^B$ ), величина выброса  $A_B^{\tau}$  за период наблюдения с учетом формул (2), (10) и (11) равна:

$$A_B^{\tau} = A_{\Pi} \left( \frac{m_0}{m_{\Pi}} \right) \left( \frac{\omega_B}{\omega_B} \right). \quad (12)$$

Из формулы (12) видно, что продолжительность периода наблюдения непосредственно не используется для определения величины выброса, однако совершенно очевидно, что  $\omega_B$  и  $\tau$  влияют на ОАТ ( $C_{НТО}^{\Pi}$ ) в жидкой фазе барботера. Из (9) имеем:

$$C_{НТО}^B = \bar{C}_{НТО} \left( \frac{\omega_B}{m_0} \right) \tau. \quad (13)$$

Из формулы (13) следует, что при прочих равных условиях, чем больше отношение  $\left( \frac{\omega_B}{m_0} \right)$ , тем больше ОАТ в барботере; или, что при более высоком отношении  $\left( \frac{\omega_B}{m_0} \right)$  требуется меньшее время для достижения наперед заданного значения ОАТ в барботере.

Если в формулах (9) и (12) положить активность пробы равной нижней пределу диапазона измерения активности трития радиометром для ЖСС, т. е.  $A_{\Pi} = A_{\Pi\text{пред}}$ , а массу пробы – равной массе, при которой этот предел измерения достигается, т. е.  $m_{\Pi} = m^*$  (паспортная характеристика радиометра для ЖСС), то можно оценить соответственно минимальную ОАТ в ВТ, определяемую при помощи ЖСА, и нижнюю границу регистрируемого выброса:

$$C_B^{\min} = A_{\Pi\text{пред}} \left( \frac{m_0}{m^*} \right) \left( \frac{1}{\omega_B \tau} \right), \text{ [Бк/м}^3\text{]}, \quad (14)$$

$$A_B^{\min} = A_{\Pi\text{пред}} \left( \frac{m_0}{m^*} \right) \left( \frac{\omega_B}{\omega_B} \right), \text{ [Бк]}. \quad (15)$$

Полученные результаты показывают, что минимальная ОАТ, которую можно оценить рассматриваемым методом, определяется возможностями ЖСА и техническими характеристиками барботера ( $\omega_B$ ). Величина оценки нижней границы выброса также определяется возможностями ЖСА и техническими характеристиками барботера, но кроме того, зависит от отношения  $\left( \frac{\omega_B}{\omega_B} \right)$ , т. е. от объемной скорости потока воздуха в анализируемой ВТ. Требования к воздушному потоку в ВТ изложены в настоящей статье несколько позже.

Отметим, что выполнение условия (8) существенно для правильного определения ОАТ. Например, при температуре воздуха  $22\text{ }^{\circ}\text{C}$  удельное содержание влаги  $F = 19,3\text{ г/м}^3$ . Тогда при объемной скорости отбора пробы  $100\text{ см}^3/\text{мин}$  и периоде наблюдения  $7\text{ сут.}$  произведение  $F\omega_{\text{БТ}} \approx 19,3\text{ г}$ , что делает невозможным использование в течение этого периода времени, например, устройства TASC-НТО-НТ-С14, которое имеет объем пробоотборника  $60\text{ мл}$  ( $m_0 = 60\text{ г}$ ), сопоставимое с количеством влаги, уносимой из барботера. Поэтому до начала измерений необходимо делать оценку продолжительности периода наблюдения, учитывая температуру воздуха в помещении (а лучше – непосредственно в месте отбора пробы воздуха). Обязательным условием при проведении измерения выброса является требование постоянства температуры воздуха в течение периода наблюдения.

Существенным условием применения описанного метода является эффективность улавливания трития барботером и эффективность конверсии элементарного (НТ) трития в оксид (НТО) для двухкаскадного барботера.

## Объекты измерений и измеряемые величины

Объектом измерений является загрязненный тритием воздух, удаляемый в атмосферу через ВТ. Измеряемая величина – активность выброса трития [Бк] за выбранный оператором период наблюдения. Методика используется для конкретного источника выброса, имеющего следующие характеристики: объемная скорость потока воздуха – от  $1300$  до  $1700\text{ м}^3/\text{ч}$ ; линейная скорость потока – от  $4,6$  до  $6,1\text{ м/с}$ , номинальное сечение воздуховода  $\varnothing 315\text{ мм}$ .

Операционные величины:

- $A_{\text{П}}^{\text{Б1}}$  – активность трития в аликвоте барботера Б1;
- $A_{\text{П}}^{\text{Б2}}$  – активность трития в аликвоте барботера Б2;
- $m_0^{\text{Б1}}$  – масса воды в барботере Б1 до начала отбора пробы;
- $m_0^{\text{Б2}}$  – масса воды в барботере Б2 до начала отбора пробы;
- $m_{\text{П}}^{\text{Б1}}$  – масса воды в аликвоте барботера Б1;
- $m_{\text{П}}^{\text{Б2}}$  – масса воды в аликвоте барботера Б2;
- $\omega_{\text{Б}}$  – объемная скорость (расход) воздуха в пробе;
- $\omega_{\text{В}}$  – объемная скорость (расход) воздуха в ВТ.

## Условия выполнения измерений

Условия применения методики:

- температура окружающего воздуха от  $+5$  до  $+50\text{ }^{\circ}\text{C}$ ;



– относительная влажность воздуха не более 80 % при температуре +35 °С и более низких температурах без конденсации влаги;

– атмосферное давление от 84,0 до 106,7 кПа.

Ограничительные условия применения настоящей методики:

– скорость воздушного потока в сечении измерения от 3,0 до 20,0 м/с;

– распределение трития в месте отбора пробы по сечению канала ВТ равномерное;

– расход воздуха в канале ВТ не изменяется в течение всего периода наблюдения;

– параметры воздушной среды в канале ВТ не выходят за выше оговоренные пределы в течение всего периода наблюдения.

Измерение активности трития в счетных пробах методом ЖСА проводится в условиях, которые оговорены эксплуатационной документацией на радиометр. Оптимальный температурный диапазон для работы с измерительным коктейлем марки *Ultima Gold* компании *Perkin Elmer* – от +15 до +19 °С.

Измерение массы воды в барботере и пробах проводится в лабораторных условиях, которые оговорены эксплуатационной документацией на весы.

## Измерение выброса трития

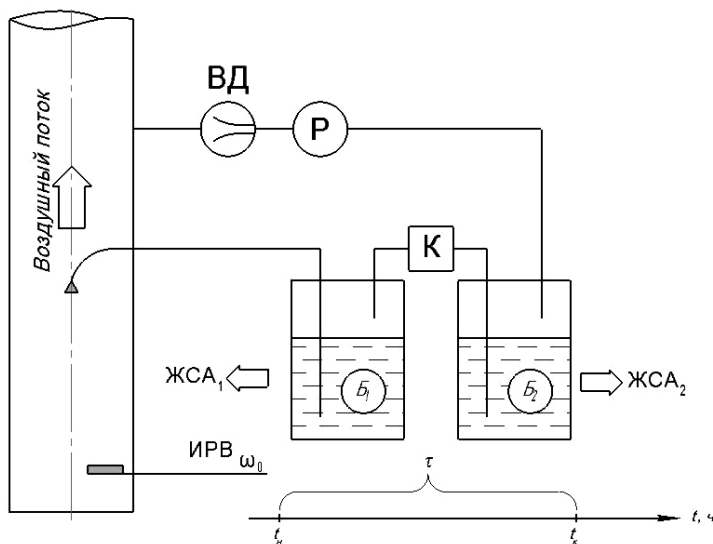


Рис. 3. Схема определения выброса трития

На схеме обозначены: ИРВ – измеритель расхода воздуха, Б₁ и Б₂ – коллекторы трития барботера, Р и ВД – расходомер и воздушная подушка, К – катализатор (укоряющий химическую реакцию окисления элементарного трития). Элементарный тритий, не поглощенный первым коллектором трития, поглощается вторым коллектором барботера (Б₂), который поглощает оксид трития,

полученный из предварительно окисленного на катализаторе элементарного трития.

Расчет выброса трития проводят по формуле:

$$\mathcal{A}_B^{\tau} = (\mathcal{A}_{B1} + \mathcal{A}_{B2}) \left( \frac{\omega_B}{\omega_{\text{B}}} \right), \quad (16)$$

где  $\mathcal{A}_{B1}$  и  $\mathcal{A}_{B2}$  – соответственно активности трития, накопленные за период наблюдения в первом и во втором каскадах барботера (Б1 и Б2 на рис. 3).

$$\mathcal{A}_{B1} = \mathcal{A}_{\text{П}}^{\text{Б1}} \left( \frac{m_0^{\text{Б1}}}{m_{\text{П}}^{\text{Б1}}} \right) \frac{1}{k_1'}, \quad (17)$$

$$\mathcal{A}_{B2} = \mathcal{A}_{\text{П}}^{\text{Б2}} \left( \frac{m_0^{\text{Б2}}}{m_{\text{П}}^{\text{Б2}}} \right) \frac{1}{k_1'' k_2}, \quad (18)$$

где  $\mathcal{A}_{\text{П}}^{\text{Б1}}$  и  $\mathcal{A}_{\text{П}}^{\text{Б2}}$  – соответственно активности трития в счетных пробах, приготовленных из аликвот, отобранных из первого (Б1) и второго (Б2) каскадов барботера,  $m_{\text{П}}^{\text{Б1}}$  и  $m_{\text{П}}^{\text{Б2}}$  – соответственно массы воды в аликвотах, отобранных из первого (Б1) и второго (Б2) каскадов барботера,  $m_0^{\text{Б1}}$  и  $m_0^{\text{Б2}}$  – соответственно массы воды, в первом (Б1) и втором (Б2) каскадах барботера до начала наблюдения,  $k_1'$  и  $k_1''$  коэффициенты улавливания оксида трития из воздуха в барботерах (соответственно в Б1 и Б2),  $k_2$  – коэффициент термического окисления (конверсии) элементарного трития в оксид,  $\omega_B$  – среднеарифметическая (за период наблюдения) объемная скорость потока пробы воздуха через барботер расходомера-пробоотборника,  $\omega_{\text{B}}$  – среднеарифметическая (за период наблюдения) объемная скорость потока воздуха в ВТ.

Модель измерений, описываемая формулой (16), справедлива при постоянных средних объемных скоростях  $\omega_B$  и  $\omega_{\text{B}}$ . Следует отметить, что определение выброса проводятся косвенными измерениями, при этом отбор пробы воздуха через барботеры расходомера-пробоотборника является невозпроизводимым. В период отбора пробы возможны многократные измерения величин  $\omega_B$  и  $\omega_{\text{B}}$ . До начала пробоотбора можно проводить многократные измерения масс  $m_0^{\text{Б1}}$  и  $m_0^{\text{Б2}}$ . После отбора пробы при приготовлении счетных проб для ЖСА возможны многократные измерения масс аликвот  $m_{\text{П}}^{\text{Б1}}$  и  $m_{\text{П}}^{\text{Б2}}$  и активности трития в счетных пробах  $\mathcal{A}_{\text{П}}^{\text{Б1}}$  и  $\mathcal{A}_{\text{П}}^{\text{Б2}}$ , однако, отметим еще раз, что воспроизвести пробу воздуха из ВТ – невозможно из-за изменения условий отбора.

## Средства измерений

При работе по методике применяют средства измерений (СИ), перечисленные в таблице.

### Средства измерений, необходимые для работы

Наименование, тип прибора, блока, устройства	Измеряемая величина	Диапазон измерений	Пределы допускаемых погрешностей $\theta_j$
Установка УППВМ (номер средства измерений в Госреестре № 270227-09)	Линейная скорость воздушного потока; переход к объемному расходу: ГОСТ 12.3.018-79 и ГОСТ 8.361-79	От 3,0 до 17,0 м/с (от 300 до 10000 м <sup>3</sup> /ч)	Пределы допускаемой относительной погрешности измерения расхода воздуха при скорости воздуха не менее 3 м/с – $\pm 15\%$
Расходомер-пробоотборник TASC-НТО-НТ-С-14 (номер средства измерений в Госреестре № 56259-14)	Расход воздуха	от 96 до 104 см <sup>3</sup> /мин	Пределы допускаемой относительной погрешности при воспроизведении расхода воздуха 100 см <sup>3</sup> /мин – не более $\pm 4\%$ ; пределы допускаемой относительной погрешности при индикации расхода воздуха 100 см <sup>3</sup> /мин – не более $\pm 20\%$
Радиометр Tri-Carb (номер средства измерений в Госреестре № 19792-06)	Активность трития	от 0,1 до $2,0 \cdot 10^4$ Бк	Предел основной относительной погрешности измерения активности в воде – $\pm 10\%$ ; нестабильность скорости счета за 24 ч непрерывной работы – не более 0,10 %
Весы AJ-220CE (номер средства измерений в Госреестре № 25752-07)	Масса воды	от 1,00 до 60,0 г	Пределы допускаемой погрешности при эксплуатации в интервалах взвешивания: до 5 г – $\pm 0,005$ г; свыше 5 г до 20 г – $\pm 0,01$ г свыше 20 г – $\pm 0,015$ г

## Порядок измерений

Процесс измерения выброса состоит из следующих этапов:

- измерение массы воды в барботерах расходомера-пробоотборника до начала отбора пробы из ВТ;
- отбор в течение периода наблюдения пробы воздуха из ВТ с целью экстрагирования из нее трития в воду барботеров;
- периодическое измерение расхода воздуха (объемной скорости) в воздуховоде ВТ в течение периода наблюдения;
- измерение массы воды в барботерах расходомера-пробоотборника после завершения периода наблюдения;
- отбор и измерение массы аликвот воды из барботеров для приготовления счетных проб ЖСС;
- ЖСС счетных проб.

Таким образом, измерение состоит из однократного (в течение периода эксперимента) отбора проб трития в барботеры, многократного измерения расхода воздуха через ВТ, измерений массы воды в барботерах и счетных пробах и, наконец, ЖСС счетных проб из барботеров. Объемную скорость воздуха через барботеры ( $\omega_B$ ) в процессе эксперимента не измеряют, а считают постоянной и равной заводской установке; при этом приписывается нижний уровень значения  $\omega_B$ .

## Неопределенность результатов измерений

Результатом расчета выброса трития, удаляемого через ВТ, является интервал значений от  $(A_B^c)_{\min}$  до  $(A_B^c)_{\max}$ , в котором с вероятностью  $P = 0,95$  находится значение активности  $A_B^c$  [6]. Очевидно, что  $(A_B^c)_{\max} - (A_B^c)_{\min} = 2U(P)$ .

$$U(P) = kU_c = 2U_c, \quad (19)$$

где  $U(P)$  – расширенная неопределенность измерений;  $k$  – коэффициент охвата, зависящий от величины доверительной вероятности;  $k = 2$  для  $P = 0,95$ ;  $U_c$  – суммарная стандартная неопределенность измерений. В соответствии с [7] суммарная стандартная неопределенность оценивается по соотношению:

$$U_c = \sqrt{U_R^2 + U_S^2 + U_0^2}, \quad (20)$$

где  $U_R$  – инструментальная неопределенность, обусловленная основной погрешностью средств измерений;  $U_S$  – статистическая неопределенность измерений;  $U_0$  – неопределенность интерпретации результата измерения в кон-

трольной точке. Вместе с тем суммарная стандартная неопределенность представляет собой положительный квадратный корень из суммы дисперсий, т. е.

$$U_c = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left( \frac{\partial \mathcal{A}_B^\tau}{\partial X_i} \right)^2} u_{X_i}, \quad (21)$$

где  $u_{X_i}$  стандартные неопределенности операционных величин, оцененные по типу  $A$  или  $B$  [8].

Инструментальная неопределенность:

$$U_R = \frac{1}{1,1\sqrt{3}} \sqrt{\sum_i^m [(\delta_{0i})^2 (X_i)^2] \left( \frac{\partial \mathcal{A}_B^\tau}{\partial X_i} \right)^2}, \quad (22)$$

Расчет по формуле (22) показывает, что при обнаружении в аликвотах обоих барботеров расходомера-пробоотборника активности трития 0,1 Бк (минимально детектируемая активность радиометром ЖСС) выброс трития через ВТ равен 0,45 МБк (0,22 МБк в виде НТО и 0,23 МБк в виде НТ). Инструментальная неопределенность при этом равна 0,058 МБк, т. е.  $\pm 12,7\%$ .

Статистическая неопределенность:

$$U_c = \sqrt{\left( \sigma_{\mathcal{A}_\Pi^{B1}}^2 \right) \left( \frac{\partial \mathcal{A}_B^\tau}{\partial \mathcal{A}_\Pi^{B1}} \right)^2 + \left( \sigma_{\mathcal{A}_\Pi^{B2}}^2 \right) \left( \frac{\partial \mathcal{A}_B^\tau}{\partial \mathcal{A}_\Pi^{B2}} \right)^2 + \left[ t_p(n) \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\omega_{B_i} - \bar{\omega}_B)^2}{n(n-1)} \frac{\partial \mathcal{A}_B^\tau}{\partial \omega_B}} \right]^2}. \quad (23)$$

Неопределенность метода определяется как

$$U_0 = \frac{1}{1,1\sqrt{3}} \sqrt{[(\delta_0)_M]^2 \left[ \left( \frac{\partial \mathcal{A}_B^\tau}{\partial \mathcal{A}_\Pi^{B1}} \right)^2 (A_\Pi^{B1})^2 + \left( \frac{\partial \mathcal{A}_B^\tau}{\partial \mathcal{A}_\Pi^{B2}} \right)^2 (A_\Pi^{B2})^2 \right]}, \quad (24)$$

где  $(\delta_0)_M = 0,1$  – погрешность метода.

Расширенная неопределенность измерений рассчитывается по формуле (20) с учетом (22)–(24).

Если в процессе пользования методики окажется что  $\sqrt{3}U_R > 8U_S$ , то в соответствии с [9] статистической неопределенностью можно пренебречь и расширенная неопределенность измерений оценивается по формуле:

$$2\sqrt{U_R^2 + U_0^2}. \quad (25)$$

Расчет по формуле (25) показывает, что при обнаружении в аликвотах обоих барботеров расходомера-пробоотборника активности трития 0,1 Бк

(выброс трития через ВС равен 0,45 МБк) неопределенность методики равна 0,14 МБк, т. е.  $\pm 32\%$ .

Расширенная неопределенность измерений выброса с учетом статистической неопределенности рассчитывается по формуле (20).

## Заключение

Рассмотрен метод измерения выброса трития методом барботирования. Показано, что при использовании СИ, описанных в настоящей статье, возможно измерение выброса в ВТ от 0,45 МБк (0,22 МБк в виде НТО и 0,23 МБк в виде НТ). Расширенная неопределенность методики равна  $\pm 32\%$ .

## Список литературы

1. Руководство по безопасности при использовании атомной энергии «Рекомендации по методам и средствам контроля за выбросами радиоактивных веществ в атмосферный воздух» (РБ-135-17). Утверждено приказом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору от 30.08.2017 № 347.
2. Методика разработки и установления нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферный воздух. Утверждена приказом Ростехнадзора от 07 ноября 2012 г. № 639 (зарегистрирован Минюстом России 18 января 2012 г.; регистрационный № 26595).
3. Беловодский Л. Ф., Гришмановский В. И., Гаевой В. К. Тритий. – М.: Энергоатомиздат, 1985, 248 с.
4. Методы измерения трития. США: Перевод с английского под редакцией Ю. В. Сивинцева. – М.: Атомиздат, 1978. США, 1976. 96 с.
5. Под ред. Гришмановского В. И. Дозиметрический и радиационный контроль при работе с радиоактивными веществами и источниками ионизирующих излучений. (методическое руководство). Т. 1. Организация и методы контроля. – М.: Атомиздат, 1980, 272 с.
6. ГОСТ 8.638-2013 Государственная система обеспечения единства измерений. Метрологическое обеспечение радиационного контроля. Основные положения.
7. МИ 2453-2015. ГСИ. Методики радиационного контроля. Общие требования.
8. ГОСТ Р 54500.3 – 2011 / Руководство ИСО/МЭК 98-3:2008 Неопределенность измерения. Часть 3. Руководство по выражению неопределенности измерения.

9. Р 50.2.038 – 2004 Государственная система обеспечения единства измерений. Измерения прямые однократные. Оценивание погрешности и неопределенности результата измерений. Рекомендации по метрологии.

## **Determination of tritium release with accumulation method**

V. G. Kiselev, A. Yu. Kozevnikov, L. K. Porotnikov, A. S. Khapov

Federal State Unitary Enterprise «All-Russian Research Institute  
of Automatics», Moscow, Russia  
vniia4@vniia.ru

*The article runs about tritium content measurement in tritium handling fabric stack release into environment both in molecular and in oxidized forms. The described method admits measurement of molecular tritium starting with 0.45 MBq.*