

Rozvoj metod stanovení aktivit ^{14}C ve vodách s důrazem na rozlišení forem uhlíku

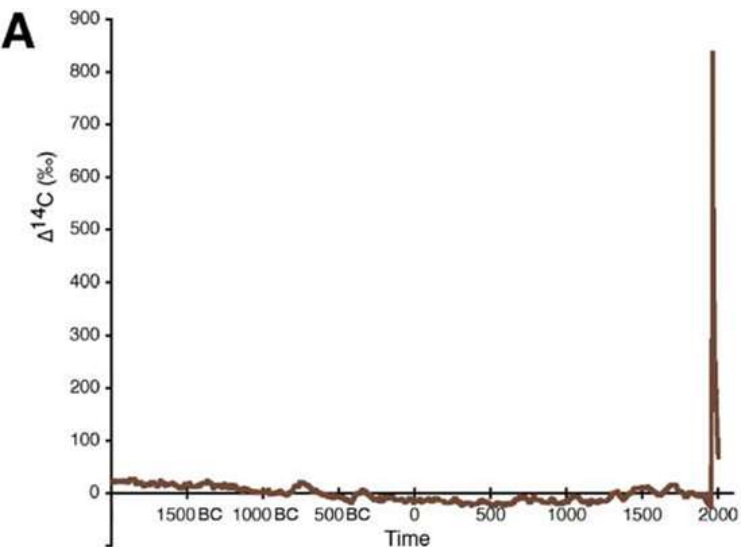
Michal Fejgl^{1,2}, Ivo Světlík^{2,1}

¹Státní ústav radiační ochrany, v.v.i., Bartoškova 28, Praha 4, 14000

²Oddělení dozimetrie záření, Ústav jaderné fyziky v.v.i., AV ČR, Na truhlářce 39/64, Praha 8, 18000

^{14}C a radiační ochrana

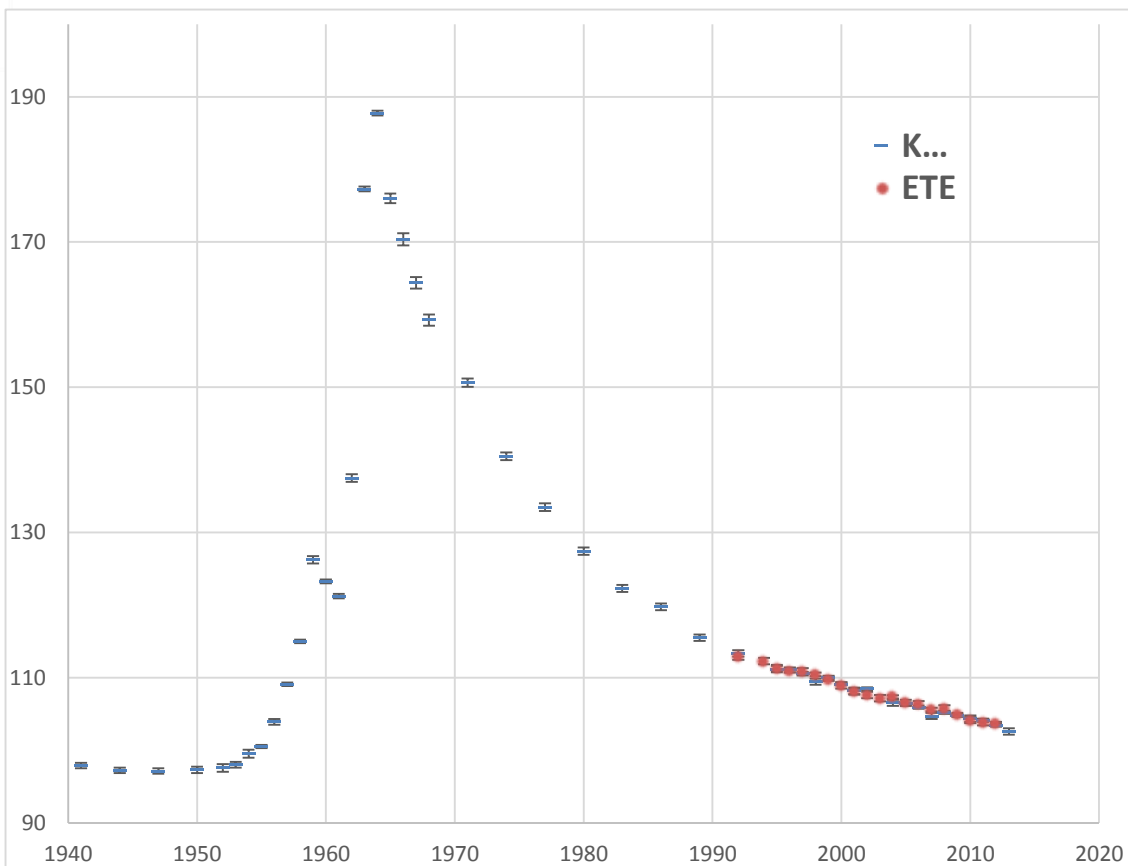
- Kosmogenní radionuklid
- Biogenní prvek, snadno vstupuje do těla člověka
- Střední zastoupení uhlíku v těle dospělého člověka je 16 kg, denní příjem uhlíku 0,3 kg za den, biologický poločas uhlíku je 40 dní (ICRP 71, 1995).
- Konverzní faktor pro inhalaci a ingesci ^{14}C má hodnotu $5,8 \cdot 10^{-10} \text{Sv.Bq}^{-1}$
- Při současných aktivitách ^{14}C v přírodě na úrovni přibližně 230 Bq.kg^{-1} C je efektivní dávka obdržena jednotlivcem z populace $12 \mu\text{Sv}$ za rok (UNSCEAR 2008, SÚJB 2002).
- ^{14}C způsobuje nejvyšší dávkovou zátěž obyvatelstvu v okolí JE s reaktory typu PWR



- Do roku 1950 jen mírné výkyvy aktivity ^{14}C v atmosféře
- Téměř zdvojnásobená aktivita ^{14}C v atmosféře v roce 1963 vlivem testů jaderných zbraní

Spalding et al. (2005)

- Po roce 1963 pokles aktivit především přestupem ^{14}C do jiných rezervoárů a díky Suessovu efektu



Porovnání produkce ^{14}C podle způsobu vzniku

- Kosmogenní produkce ($1.4 \text{ PBq}\cdot\text{r}^{-1}$)
- Testy jaderných zbraní celkem vyprodukovaly (220 až 350 PBq (IAEA 2004, UNSCEAR 2008)).
- Jaderně energetická zařízení $150 \text{ TBq}\cdot\text{r}^{-1}$
(Jaderné elektrárny + přepracovatelské závody)

$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ (1,82 b)

$^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$ (0,24 b)

	Normalizované výpusti ^{14}C ($\text{TBq}\cdot\text{GW}_e^{-1}\cdot\text{rok}^{-1}$)	
	podle Mazeika et al. (2010)	podle UNSCEAR (2008)
HWR (včetně CANDU)	1,6	1,2
LWGR (včetně RBMK)	1,3	1,3
BWR	0,51	0,53
PWR	0,22	0,22
FBR		0,12

^{14}C způsobuje nejvyšší dávkové zátěže obyvatelstva ze všech radionuklidů, vypouštěných za rutinního provozu elektráren (PWR) do plyných výpustí

Uvolňování ^{14}C z jaderných elektráren s PWR reaktory

- 95% ^{14}C je z elektráren s PWR reaktory uvolňováno prostřednictvím plyných výpustí (Kunz 1985).

Normalizované výpusti ^{14}C TBq.GW _e ⁻¹ .rok ⁻¹)			
Rok		JE Dukodany	JE Temelín
2007		0,37	0,36
2008		0,42	0,32
2009		0,47	0,31
2010		0,41	0,31
2011		0,46	0,79
2012		0,44	0,49
2013		0,44	0,42

Fluktuace výpustí ^{14}C do ovzduší

Tabulka 4

Výpusti do ovzduší v období od: 27.12.2010 do: 1.1.2012

HVB2 VK21

od do	H-3 [GBq]	C-14 [GBq]	AR-41 [GBq]	CR-51 [kBq]	MI-54 [kBq]	CO-57 [kBq]	CO-58 [kBq]	CO-60 [kBq]	AS-76 [kBq]	KR-85 [GBq]
27.12.2010 23.01.2011	77,8881	24,9313	62,0099 <	0,6167 <	0,0749 <	0,0560 <	0,0716 <	0,0823 <	0,2801	
24.01.2011 27.02.2011	71,2142	34,2489	83,0519 <	0,8005 <	0,0988 <	0,0732 <	0,0911 <	0,1024 <	0,4077	
28.02.2011 03.04.2011	31,1216	28,9718	68,9987 <	0,8220 <	0,0982 <	0,0765 <	0,0914 <	0,1012 <	0,4190	
04.04.2011 01.05.2011	35,4571	26,4874	68,6806 <	0,6987 <	0,0786 <	0,0631 <	0,0746 <	0,0809 <	0,3173	
02.05.2011 29.05.2011	32,3159	599,3597 < >	12,1352 < 11,9960	0,7399 <	0,0818 <	0,0817 <	0,0753 <	0,0849 >	10,7603 10,5497	
30.05.2011 26.06.2011	17,4575	1,4385 <	0,1945 < >	15,4337 < 15,0710 >	0,8492 < 0,8081	0,0813 < >	2,1754 < 2,1331 >	0,9941 < 0,8603	0,5824	
27.06.2011 31.07.2011	17,6630	8,6940 < >	18,0596 < 17,8413	1,1767 <	0,1298 <	0,1139 <	0,1302 <	0,1546 <	0,6994	
01.08.2011 28.08.2011	25,0621	33,8432	114,2908 <	0,9617 <	0,1110 <	0,1132 <	0,1027 <	0,1231 <	0,3190	
29.08.2011 02.10.2011	37,0856	30,3921 >	125,6915 < 125,6368	0,8986 <	0,1007 <	0,0841 <	0,0950 <	0,1154 <	0,3997	
03.10.2011 30.10.2011	31,6862	42,3032	133,8119 <	0,6662 <	0,0768 <	0,0596 <	0,0716 <	0,0829 <	0,2923	
31.10.2011 27.11.2011	51,1694	40,1604	128,8363 <	0,6808 <	0,0767 <	0,0611 <	0,0764 <	0,0864 <	0,3715	
28.11.2011 01.01.2012	68,7405	49,3889	151,2669 <	0,9743 <	0,1109 <	0,0946 <	0,1091 <	0,1211 <	0,4824	
27.12.2010 01.01.2012	496,8612	920,2194 < >	967,0278 < 966,4211 >	24,4698 < 15,0710 >	1,8874 < 0,8081	0,9583 < >	3,1644 < 2,1331 >	2,1293 < 0,8603 >	15,3311 < 10,5497	16,9500
od do	MO-99 [kBq]	KR-85M [GBq]	KR-87 [GBq]	KR-88 [GBq]	ZR-95 [kBq]	NB-95 [kBq]	RU-103 [kBq]	I-131PLYN [MBq]	I-131 [kBq]	SB-124 [kBq]
27.12.2010 23.01.2011	< 0,0749	1,4047	1,2515 >	0,9895 < 0,6416	0,1279 <	0,0823 <	0,0744 <	0,0017 <	0,0812 <	0,0740

Uvolňování ^{14}C do kapalných výpustí

- JE s PWR reaktory uvolňují $<5\%$ ^{14}C ve formě kapalných výpustí (Kunz 1985).
- Aktivity ^{14}C v kapalných výpustech nejsou stanovovány a příspěvek k dávkové zátěži obyvatelstva od této formy výpustí není započítáván (SÚJB 2009).
- Povolení vydané SÚJB vychází z nařízení Euratom 2004, to stanovení aktivit ^{14}C v kapalných výpustech neupravuje

Princip rozlišení forem uhlíku

- IC - okyselení roztoku a uvolnění CO_2 z karbonátové formy
- VOC – spálení roztoku
- DOC - přidavek katalyzátoru a kyselá oxidace

- Uvolněný CO_2 je sorbován do 3 M NaOH, aktivita ^{14}C je stanovena pomocí LSC

Předběžné výsledky stanovení aktivity chemických forem ^{14}C ($\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$) ve vzorcích odpadních vod ze sběrných nádrží OTD30 B01 a B02 JE Temelín

	označení vzorku		
forma uhlíku	14_389	14_390	14_391
DOC	< 1,7	$1,8 \pm 0,8$	$2,0 \pm 0,8$
VOC	< 0,4	< 0,4	< 0,4
IC	$1,3 \pm 0,2$	$1,1 \pm 0,2$	$1,0 \pm 0,2$

DOC – netěkavé organické rozpustné formy uhlíku, VOC – těkavé organické spalitelné formy uhlíku, IC – anorganické formy (rozpuštěný $^{14}\text{CO}_2$ a karbonátová forma).

V rámci dalšího výzkumu bude třeba snížit detekční meze a nejistoty analýz.

Celkové výpusti ^{14}C ETE

Rok	Aktivita $^{14}\text{-C}$ v GBq.rok $^{-1}$ Plynný výpusti	Aktivita ^{14}C v GBq.rok $^{-1}$ Kapalné výpusti
2014	685	19,5* <i>odhad</i>
2013	721	
2012	861	
2011	1250	
2010	495	
2009	472	
2008	440	
2007	503	
2006	412	
2005	409	

Předběžné výsledky

- Při celkové aktivitě ^{14}C v kapalných výpustech $3 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ je
- 1) podíl ^{14}C vypouštěný do kapalných výpustí asi 3% celkových výpustí
- 2) velmi konzervativní odhad efektivní dávky bez zahrnutí naředění by tato aktivita ve vodách mohla způsobovat efektivní dávku jednotlivci z kritické skupiny obyvatelstva až $2 \mu\text{Sv}\cdot\text{rok}^{-1}$, autorizovaný limit pro jedince z kritické skupiny obyvatelstva je $6 \mu\text{Sv}\cdot\text{rok}^{-1}$
- 3) je snaha monitorovat všechny radionuklidy, které se podílejí na dávce kritické skupiny obyvatelstva $>1 \%$

Závěr

- Pilotní průzkum nevyvrátil 30 let platnou „Kunzovu doktrínu“ (Kunz 1985), zastoupení ^{14}C v kapalných výpustech je ale třeba dopřesnit