

# ВОПРОСЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ

Научно-практический журнал  
ФГУП "ПРОИЗВОДСТВЕННОЕ ОБЪЕДИНЕНИЕ "МАЯК"  
Государственная корпорация по атомной энергии "Росатом"

Издаётся с 1996 г., периодичность – 4 номера в год  
№ 4 (104) 2021 г.

ГЛАВНЫЙ РЕДАКТОР Ю.Г. МОКРОВ  
ЗАМЕСТИТЕЛЬ ГЛАВНОГО РЕДАКТОРА И.Г. ТАНАНАЕВ

## РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

А.В. Аклеев, В.Н. Большаков, Л.А. Большов, В.И. Величкин,  
Е.А. Демченко (отв. секретарь), М.В. Жуковский, И.А. Иванов, Л.А. Ильин,  
С.Н. Калмыков, Д.Н. Колупаев, Н.А. Кошурникова, А.И. Крышев, А.А. Куваев,  
И.И. Линге, М.В. Логунов, Б.Ф. Мясоедов, М.Г. Нагорная, М.И. Похлебаев,  
Е.А. Пряхин, С.А. Романов, М.Э. Сокольников, А.В. Трапезников,  
С.С. Уткин, А.П. Хомяков, В.Ф. Хохряков, С.В. Юдинцев

## СОДЕРЖАНИЕ

### 1. ОБРАЩЕНИЕ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ

Козина Ю.В., Кузнецова Н.А., Валова Н.И. Изучение эффективности ультразвуковой дезактивации в присутствии экранирующих материалов 3

### 2. РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ

Харлова А.Г., Лызлова Е.В., Конников А.В., Литвинова М.А. Исследование процесса выщелачивания боросиликатных стёкол для радионуклидных источников с целью оценки радиационного воздействия на химическую стойкость стекла при длительном хранении 13

### 3. РАДИОХИМИЧЕСКАЯ ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОЯТ

Ермолин В.С., Логунов М.В., Ворошилов Ю.А., Конников А.В., Лукин С.А. Обзор существующих технологий растворения уран-циркониевого ОЯТ 21

Куляко Ю.М., Трофимов Т.И., Перевалов С.А., Пилюшенко К.С., Винокуров С.Е., Мясоедов Б.Ф. Получение керамических уран-оксидных топливных композиций под воздействием СВЧ излучения 34

### 4. РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ И ОКРУЖАЮЩАЯ СРЕДА

Мокров Ю.Г., Мокров К. Ю. Особенности формирования радиационной обстановки в прибрежных районах реки Теча на примере Метлинского пруда 47

---

**СОДЕРЖАНИЕ**

---

**5. ОБЛУЧЕНИЕ И ЗДОРОВЬЕ ЧЕЛОВЕКА**

<b>Атаманюк Н.И., Стяжкина Е.В., Обвинцева Н.А., Тряпицына Г.А., Шапошникова И.А., Андреев С.С., Алдибекова А.Е., Перетыкин А.А., Пряхин Е.А.</b> Кинетика гибели и восстановления клеток костного мозга у мышей двух линий с разной радиочувствительностью после острого $\gamma$ -облучения	62
<b>Царева Ю.В., Окатенко П.В.</b> Оценка канцерогенного риска злокачественных опухолей пищеварительной системы в когорте внутриутробно облучённых детей	73

**6. ИНФОРМАЦИЯ И ПЕРСОНАЛИИ**

Глаголенко Юрию Васильевичу – 75 лет	83
Кошурниковой Нине Александровне – 95 лет	84
<b>CONTENTS</b>	<b>85</b>
<b>ABSTRACTS</b>	<b>87</b>
<b>Сведения об авторах статей</b>	<b>91</b>
<b>Содержание журнала за 2021 год</b>	<b>94</b>
<b>Правила оформления статей</b>	<b>98</b>

Журнал включён в перечень рецензируемых научных изданий, в которых должны быть опубликованы основные результаты диссертаций на соискание учёной степени кандидата наук, на соискание учёной степени доктора наук.

УДК 628.168.2

© 2021

## ИЗУЧЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ УЛЬТРАЗВУКОВОЙ ДЕЗАКТИВАЦИИ В ПРИСУТСТВИИ ЭКРАНИРУЮЩИХ МАТЕРИАЛОВ

*Ю.В. Козина, Н.А. Кузнецова, Н.И. Валова  
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Проведены исследования кавитационного разрушения алюминия в присутствии экранирующих материалов с целью подтверждения существования экранирующего эффекта. Исследованы зависимости эффективности ультразвуковой дезактивации в присутствии экранирующих материалов от температуры и состава дезактивирующего раствора.

Для исследований использовали дезактивирующие растворы, применяющиеся в подразделениях ФГУП "ПО "Маяк".

Подобраны оптимальные условия проведения процесса ультразвуковой дезактивации конструкционных материалов в присутствии экранирующих материалов: дезактивирующие средства, температуры, при которых достигаются наиболее высокие коэффициенты дезактивации.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ДЕЗАКТИВАЦИЯ, РАДИОАКТИВНОЕ ЗАГРЯЗНЕНИЕ, ДЕЗАКТИВИРУЮЩИЙ РАСТВОР, КОЭФФИЦИЕНТ ДЕЗАКТИВАЦИИ, ЭКРАНИРУЮЩИЙ ЭФФЕКТ

В настоящее время разработано большое количество различных методов дезактивации, наибольшее распространение получили химические методы. При реализации данных методов образуется значительный объем жидких радиоактивных отходов, содержащих большое количество солей, что в дальнейшем затрудняет их переработку и перевод в экологически безопасное состояние. Однако полностью отказаться от жидкостных способов дезактивации в настоящее время невозможно. Поэтому перед технологами предприятий поставлена задача по возможности интенсифицировать химические методы дезактивации радиоактивно-загрязнённых объектов (оборудования, изделий, помещений и др.).

Одним из перспективных и довольно широко применяющихся в настоящее время методов интенсификации процесса отмывки является наложение ультразвука на дезактивирующую среду. Применение ультразвука обеспечивает высокую степень очистки, защиту персонала от ионизирующего излучения и позволяет дезактивировать широкую номенклатуру изделий.

Организация процесса дезактивации с наложением ультразвука имеет ряд преимуществ: возможность дистанционного и автоматического управления, щадящее воздействие на поверхность за счёт сокращенного времени обработки, возможность одновременно проводить отмывку в различных растворах с использованием отдельных контейнеров. Кроме того, за счёт повышения эффективности дезактивации увеличивается срок использования дезактивирующих растворов и, соответственно, сокращается объем образующихся жидких радиоактивных отходов (далее – ЖРО).

Эффективность ультразвуковой (далее – УЗ) дезактивации зависит от факторов, которые часто взаимосвязаны друг с другом (температура, состав и физико-химические свойства раствора и др.).

В условиях действующего производства периодически приходится дезактивировать мелкогогабаритные изделия, такие как, например, источники ионизирующего излучения перед отправкой их потребителю. При использовании стандартных ванн промышленного производ-

ства возможна потеря ценных изделий. Также может возникнуть необходимость использовать химически агрессивные дезактивирующие рецептуры, что часто приводит к выходу из строя УЗ оборудования.

В подобных случаях целесообразно использовать вставные ванны или контейнеры небольшого объёма, а также пакеты из полимерных химически стойких материалов, которые непосредственно заполняют дезактивирующими растворами. Однако необходимо учитывать, что данные материалы могут приводить к эффекту экранирования УЗ волн за счёт поглощения, тем самым снижая в некоторой степени эффективность дезактивации.

Целью работы являлось изучение влияния экранирующих материалов (стекло, полиэтилен, полипропилен и пластикат) на эффективность ультразвуковой дезактивации нержавеющей и углеродистой сталей.

Для достижения цели необходимо было решить следующие задачи:

- экспериментально доказать существование экранирующего эффекта,
- изучить влияние присутствия экранирующих материалов на эффективность УЗ дезактивации конструкционных материалов в нескольких дезактивирующих растворах при комнатной и повышенной температурах,
- на основании анализа полученных результатов рекомендовать использование тех или иных материалов для изготовления внутренней оснастки УЗ ванн.

#### ИЗУЧЕНИЕ КАВИТАЦИОННОГО РАЗРУШЕНИЯ АЛЮМИНИЯ В ПРИСУТСТВИИ ЭКРАНИРУЮЩИХ МАТЕРИАЛОВ

На первом этапе исследования важно было убедиться в существовании эффекта экранирования (или поглощения) УЗ волн неметаллическими материалами. Для этого использовали эффект кавитационного разрушения алюминия при его погружении в воду и наложении УЗ. Алюминий является одним из наиболее подверженных кавитационному разрушению металлов, благодаря чему часто используется для быстрой диагностики работоспособности УЗ оборудования.

В качестве критерия, определяющего эффект экранирования, принимали потерю массы фрагментов алюминиевой фольги толщиной 11 мкм, размером 80×80 мм. Фрагменты полностью помещали в заполненную водой УЗ ванну и, удерживая пинцетом, проводили УЗ обработку в течение 3 мин. Часть опытов проводили с использованием в качестве экранирующих материалов стеклянного и полипропиленового стаканов. Далее высушенные фрагменты взвешивали и рассчитывали потерю массы. Внешний вид образца алюминиевой фольги после испытаний и результаты исследований представлены на рис. 1 и 2.

Из приведённых на рис. 2 результатов следует, что потеря массы алюминиевой фольги снижается в 5 раз при  $20 \pm 2$  °С, и в 1,6 раз при  $60 \pm 2$  °С при её ультразвуковой обработке через стенку стеклянного или полипропиленового стаканов. Таким образом, можно сделать вывод о том, что присутствие в объёме ванны исследованных материалов действительно в определенной степени экранирует УЗ волны. При этом эффект более выражен у полипропилена, т.к. потеря массы алюминия в этом случае наименьшая. Повышение температуры воды приводит к увеличению потерь массы во всех



Рис. 1. Внешний вид фрагмента алюминиевой фольги со следами кавитационного разрушения

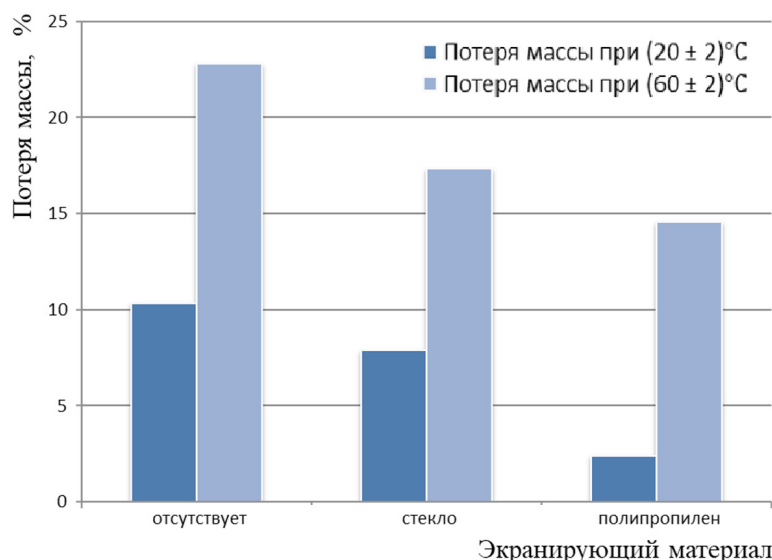


Рис. 2. Зависимость потери массы алюминиевой фольги в результате кавитационного разрушения в воде от температуры и присутствия экранирующих материалов

случаях, однако общая тенденция сохраняется: наименьшая степень кавитационного разрушения наблюдается при использовании полипропиленового стакана.

#### ИЗУЧЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ УЛЬТРАЗВУКОВОЙ ДЕЗАКТИВАЦИИ КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ В РАЗЛИЧНЫХ ДЕЗАКТИВИРУЮЩИХ РАСТВОРАХ

Для проведения экспериментов были изготовлены образцы из нержавеющей и углеродистой сталей (листовой прокат).

Образцы конструкционных материалов имели прямоугольную форму, габаритные размеры составляли 20×30×2 мм.

Перед нанесением радиоактивного загрязнения образцы обезжиривали ватным тампоном, смоченным этиловым спиртом, и высушивали в вытяжном шкафу. На обезжиренные образцы нержавеющей и углеродистой стали капельным методом наносили расчётное количество загрязняющего раствора, после чего их сушили в вытяжном шкафу под лампой в течение 20 мин. Далее

измеряли исходное загрязнение образцов.

Для загрязнения образцов использовали азотнокислый раствор, содержащий смесь продуктов деления (изотопы  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ), и технологические пробы, содержащие в своём составе  $\alpha$ -активные нуклиды ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{U}$  и др.).

Для дезактивации использовали следующие растворы:

- раствор препарата ЛАБСК с массовой концентрацией 10 г/дм<sup>3</sup>;
- раствор Р-2, содержащий 5 г/дм<sup>3</sup> щавелевой кислоты, 3,5 г/дм<sup>3</sup> триполифосфата натрия, 10 г/дм<sup>3</sup> сульфанола, воду;
- раствор ТМС "КОМПО К Клин 1" с массовой концентрацией 50 г/дм<sup>3</sup> (основной компонент ТМС – лимонная кислота).

Процесс дезактивации осуществляли следующим образом: размещённые на подвесах образцы по одному погружали в ёмкость с дезраствором при температурах 20±2 °C и 60±2 °C. Далее ёмкость с образцом помещали в УЗ ванну, заполненную водой аналогичной температуры, включали УЗ генератор. В качестве экранирующих материалов использовали следующие материалы:

- стеклянный стакан объёмом 600 см<sup>3</sup>;
- полипропиленовый стакан объёмом 1000 см<sup>3</sup>;
- полиэтиленовый пакет объёмом около 1200 см<sup>3</sup> (толщина полиэтилена составляла 0,13 мм);
- пластиковый пакет (материал РЗ) объёмом около 1200 см<sup>3</sup> (толщина пластика составляла 0,23 мм).

Дезактивацию осуществляли последовательными циклами длительностью 1 мин, после каждого цикла дезактивации проводили замену дезраствора на свежий. Отношение площади образца к объёму рабочего раствора составляло 1 см<sup>2</sup> : 10 см<sup>3</sup>. После окончания каждого цикла дезактивации образцы вынимали, промывали проточной водой, высушивали на воздухе и измеряли остаточное загрязнение.

Для проведения исследований использовали УЗ установку марки УЗВ-18/200-ТН производства ЗАО "РЭЛТЕК" (г. Екатеринбург), состоящую из ванны и УЗ генератора.

Эффективность дезактивирующих средств оценивали по значению коэффициента дезактивации, определяемого отношением уровней

радиоактивного загрязнения образцов до и после дезактивации.

Исходное и остаточное загрязнение образцов измеряли по плотности потока  $\alpha$ - и  $\beta$ -частиц с применением радиометрической установки типа МКС-01Р с соответствующими блоками детектирования типа БДКА-01Р и БДКБ-01Р.

Исходные уровни радиоактивного  $\alpha$ - и  $\beta$ -загрязнения для конструкционных материалов составляли:

- для углеродистой стали около 1000  $\alpha$ -част./((см<sup>2</sup>·мин)) и около 6000  $\beta$ -част./((см<sup>2</sup>·мин));
- для нержавеющей стали около 6000  $\alpha$ -част./((см<sup>2</sup>·мин)) и от 13000 до 17000  $\beta$ -част./((см<sup>2</sup>·мин)).

Результаты исследований эффективности УЗ дезактивации при 20±2 °С и 60±2 °С в присутствии различных экранирующих материалов приведены в табл. 1–4.

Из представленных в табл. 1 данных следует, что при использовании стекла в качестве экранирующего материала повышение температуры снижает время ультразвуковой обработки углеродистой стали в 3–10 раз по сравнению с дезактивацией при 20±2 °С. Данный результат

Таблица 1

Результаты УЗ дезактивации при использовании стекла в качестве экранирующего материала

Конструкционные материалы	Тип загрязнения	Дезактивирующий раствор	Температура, °С					
			20±2			60±2		
			Загрязнение, част./((см <sup>2</sup> ·мин))		Время, мин	Загрязнение, част./((см <sup>2</sup> ·мин))		Время, мин
			Исходное	Остаточное		Исходное	Остаточное	
УС	$\alpha$	ЛАБСК	1494	фон	10	997	фон	1
		Р-2	970	фон	4	2540	фон	2
		КОМПО К КЛИН 1	1540	фон	10	1321	фон	2
	$\beta$	ЛАБСК	6520	фон	10	5352	фон	1
		Р-2	5998	фон	7	8630	фон	2
		КОМПО К КЛИН 1	6603	фон	10	6765	фон	2
НС	$\alpha$	ЛАБСК	6222	182	10	5414	26	10
		Р-2	4265	18	10	6130	фон	2
		КОМПО К КЛИН 1	5942	4	10	6271	27	10
	$\beta$	ЛАБСК	14484	297	10	13605	210	10
		Р-2	11476	23	10	16500	фон	3
		КОМПО К КЛИН 1	16046	12	10	14788	41	10



объясняется повышенным коррозионным воздействием дезактивирующих растворов на углеродистую сталь при  $60 \pm 2$  °С.

Для УЗ дезактивации нержавеющей стали повышение температуры в растворах ЛАБСК и "КОМПО К КЛИН 1" не влияет на эффективность и продолжительность дезактивации. Повышение температуры раствора Р-2 позволяет снизить время дезактивации и полностью удалить с поверхности образцов нержавеющей стали как  $\alpha$ -, так и  $\beta$ -излучающие нуклиды.

Из представленных в табл. 2 результатов видно, что при использовании полипропилена в качестве экранирующего материала повышение температуры в растворах ЛАБСК и "КОМПО К КЛИН 1" позволило сократить до 2–3 мин время дезактивации углеродистой стали до фоновых значений остаточного радиоактивного загрязнения. Повышение температуры раствора Р-2 практически не повлияло на время УЗ обработки образцов углеродистой стали, поскольку даже при  $20 \pm 2$  °С указанный раствор полностью удаляет как  $\alpha$ -, так и  $\beta$ -излучающие нуклиды. В случае дезактивации нержавеющей

стали наблюдали противоположные результаты: повышение температуры раствора Р-2 привело к снижению времени полной дезактивации (до фоновых значений), в то время как в растворах ЛАБСК и "КОМПО К КЛИН 1" повышение температуры не повлияло на эффективность и продолжительность дезактивации.

Как следует из представленных в табл. 3 данных, при использовании полиэтилена в качестве экранирующего материала углеродистую сталь удалось полностью дезактивировать во всех растворах за время от 3 до 10 мин даже при комнатной температуре. Повышение температуры до  $60 \pm 2$  °С позволило сократить время УЗ дезактивации до 1 мин.

Повышение температуры рабочих растворов при дезактивации нержавеющей стали оказалось эффективным только для раствора Р-2: образцы были отмыты до фоновых значений за меньшее время, которое составило от 4 до 7 мин. В случае растворов ЛАБСК и "КОМПО К КЛИН 1" повышение температуры не повлияло на эффективность и продолжительность дезактивации.

Таблица 2

Результаты УЗ дезактивации при использовании полипропилена  
в качестве экранирующего материала

Конструкционные материалы	Тип загрязнения	Дезактивирующий раствор	Температура, °С					
			20±2			60±2		
			Загрязнение, част/(см²·мин)		Время, мин	Загрязнение, част/(см²·мин)		Время, мин
			Исходное	Остаточное		Исходное	Остаточное	
УС	$\alpha$	ЛАБСК	1790	фон	7	937	фон	2
		Р-2	1088	фон	2	2530	фон	2
		КОМПО К КЛИН 1	1160	3,1	10	1297	фон	3
	$\beta$	ЛАБСК	6186	фон	10	4600	фон	2
		Р-2	6264	фон	3	8500	фон	2
		КОМПО К КЛИН 1	5166	фон	10	6237	фон	3
НС	$\alpha$	ЛАБСК	6770	29	10	5864	35	10
		Р-2	4383	26	10	6660	фон	4
		КОМПО К КЛИН 1	6066	11	10	6569	12	10
	$\beta$	ЛАБСК	15372	41	10	13555	62	10
		Р-2	11230	29	10	17990	фон	4
		КОМПО К КЛИН 1	15520	22	10	15712	19	10

Таблица 3

Результаты УЗ дезактивации при использовании полиэтилена  
в качестве экранирующего материала

Конструк- ционные материалы	Тип загряз- нения	Дезактивирующий раствор	Температура, °C					
			20±2			60±2		
			Загрязнение, част/(см <sup>2</sup> ·мин)		Время, мин	Загрязнение, част/(см <sup>2</sup> ·мин)		Время, мин
			Исходное	Остаточное		Исходное	Остаточное	
УС	α	ЛАБСК	1333	фон	10	997	фон	1
		Р-2	1267	3	10	2860	фон	1
		КОМПО К КЛИН 1	1550	фон	4	1463	фон	1
	β	ЛАБСК	6485	4	10	4578	фон	1
		Р-2	5999	фон	7	7890	фон	1
		КОМПО К КЛИН 1	6530	фон	3	7663	фон	1
НС	α	ЛАБСК	7166	13	10	5672	13	10
		Р-2	7620	9	10	6340	фон	7
		КОМПО К КЛИН 1	6187	6	10	5315	3	10
	β	ЛАБСК	15008	22	10	15022	18	10
		Р-2	15998	6	10	15820	фон	4
		КОМПО К КЛИН 1	16728	13	10	15714	5	10

Таблица 4

Результаты УЗ дезактивации при использовании пластика в качестве  
экранирующего материала

Конструк- ционные материалы	Тип загряз- нения	Дезактивирующий раствор	Температура, °C					
			20±2			60±2		
			Загрязнение, част/(см <sup>2</sup> ·мин)		Время, мин	Загрязнение, част/(см <sup>2</sup> ·мин)		Время, мин
			Исходное	Остаточное		Исходное	Остаточное	
УС	α	ЛАБСК	1541	3	10	1033	фон	1
		Р-2	1360	фон	3	2010	фон	1
		КОМПО К КЛИН 1	1740	фон	7	1561	фон	2
	β	ЛАБСК	5840	9	10	5202	фон	1
		Р-2	6260	фон	2	4730	фон	2
		КОМПО К КЛИН 1	6539	фон	4	7324	фон	3
НС	α	ЛАБСК	5788	14	10	5783	27	10
		Р-2	8082	11	10	6440	фон	4
		КОМПО К КЛИН 1	6198	фон	10	5824	3	10
	β	ЛАБСК	14240	26	10	15249	42	10
		Р-2	16273	10	10	17430	фон	7
		КОМПО К КЛИН 1	16156	фон	10	15878	10	10



При использовании пластика в качестве экранирующего материала при УЗ дезактивации углеродистой стали были получены результаты, аналогичные результатам при её отмывке в полипропиленовом стакане (рис. 4). При повышении температуры растворов ЛАБСК и "КОМПО К КЛИН 1" до 10 раз сократилось время обработки ультразвуком до достижения фоновых значений остаточного радиоактивного загрязнения. В случае повышения температуры раствора Р-2 значительного сокращения времени дезактивации не произошло.

Также было выявлено, что и для нержавеющей стали повышение температуры рабочего раствора ЛАБСК не привело к существенному изменению качества дезактивации: ни время обработки, ни значения остаточного радиоактивного загрязнения не уменьшились.

В растворе Р-2 с повышением температуры до  $60 \pm 2$  °С в 1,5–2,5 раза уменьшилось время обработки до достижения фоновых значений остаточного загрязнения.

В случае дезактивации нержавеющей ста-

ли ТМС "КОМПО К КЛИН 1" были получены противоположные результаты: повышение температуры привело к снижению эффективности дезактивации, поскольку после 10 мин УЗ обработки остаточное загрязнение составляло 3  $\alpha$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ) и 10  $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ), в то время как при температуре  $20 \pm 2$  °С за это же время образцы были полностью дезактивированы.

Приведённые на рис. 3–5 выборочные данные по зависимости коэффициента дезактивации нержавеющей стали от времени УЗ обработки в присутствии исследованных экранирующих материалов также наглядно демонстрируют степень влияния вида экранирующего материала на конечный результат в зависимости от ряда других факторов, в совокупности его определяющих (температура раствора, время УЗ обработки, состав дезактивирующего раствора).

Таким образом, однозначно говорить о преимуществах какого-либо полимерного материала или стекла для использования при УЗ

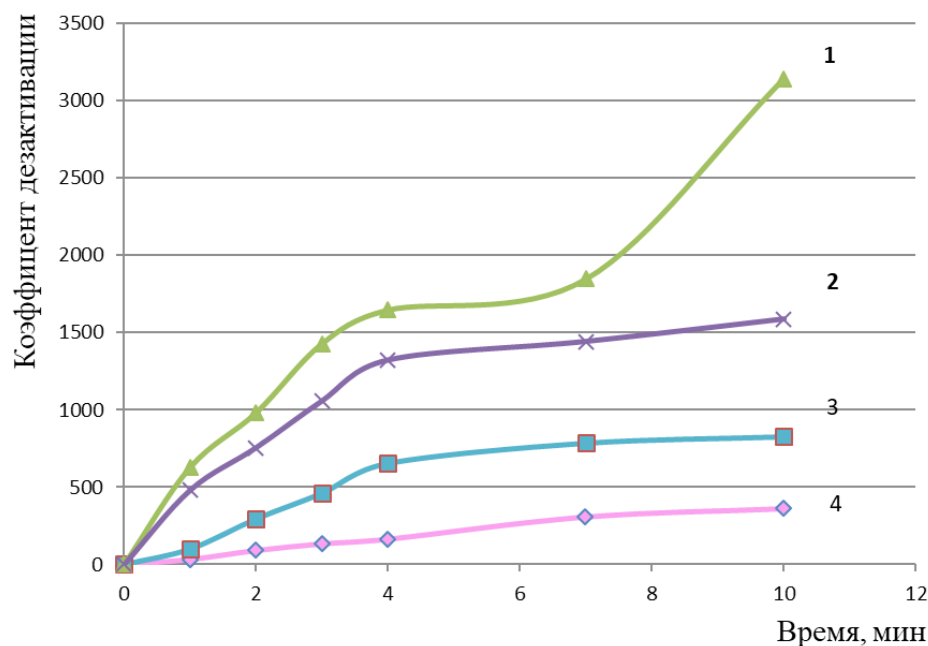


Рис. 3. Зависимость эффективности УЗ дезактивации нержавеющей стали, загрязнённой  $\beta$ -излучающими нуклидами, в растворе "КОМПО К КЛИН 1" при  $60 \pm 2$  °С в присутствии различных экранирующих материалов:  
1 – полиэтилен; 2 – пластикат; 3 – полипропилен; 4 – стекло

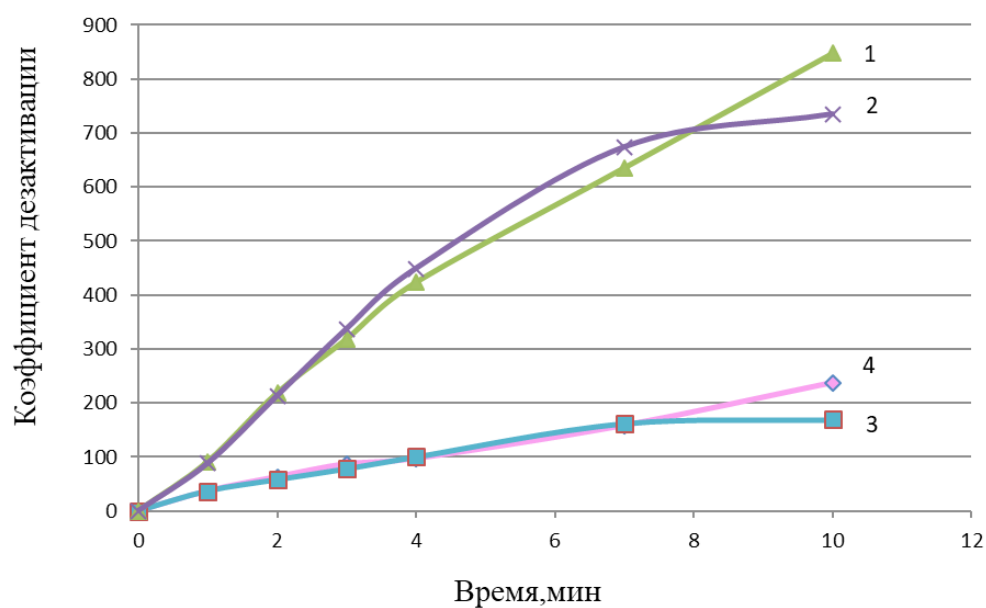


Рис. 4. Зависимость эффективности УЗ дезактивации нержавеющей стали, загрязнённой  $\alpha$ -излучающими нуклидами, в растворе Р-2 при 20±2 °С в присутствии различных экранирующих материалов: 1 – полиэтилен; 2 – пластикат; 3 – полипропилен; 4 – стекло

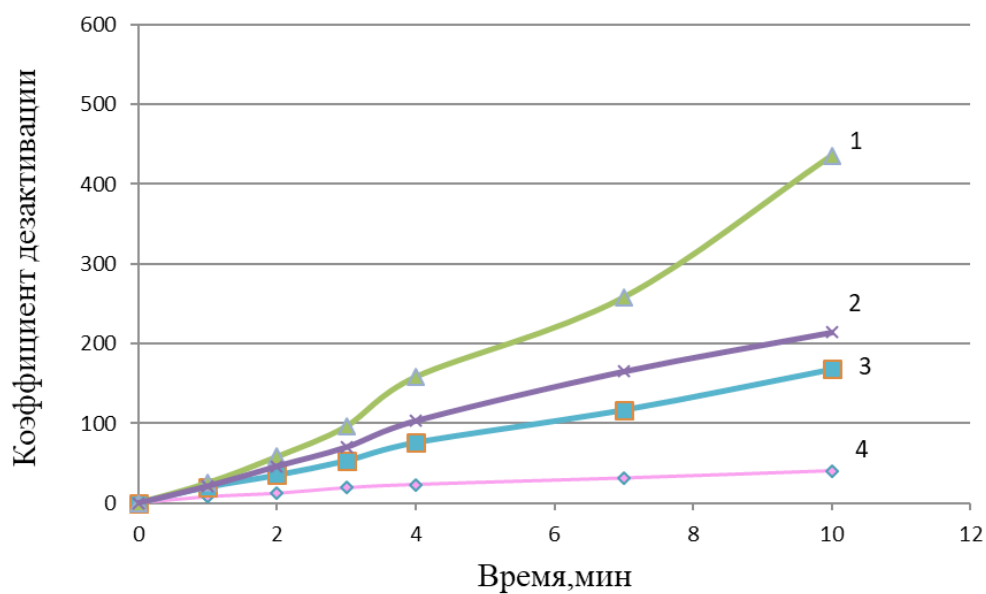


Рис. 5. Зависимость эффективности УЗ дезактивации нержавеющей стали, загрязненной  $\alpha$ -излучающими нуклидами, в растворе ЛАБСК при 60±2 °С в присутствии различных экранирующих материалов: 1 – полиэтилен; 2 – пластикат; 3 – полипропилен; 4 – стекло

дезактивации не представляется возможным.

Поэтому при организации технологического процесса УЗ дезактивации для каждого конкретного случая целесообразно подбирать оптимальный вид материала для изготовления вставных ванн или других ёмкостей с учётом следующих параметров:

- вида подлежащего дезактивации конструкционного материала (углеродистая или нержавеющая стали);
- типа радиоактивного загрязнения поверхности ( $\alpha$ - или  $\beta$ -радионуклиды);
- рецептуры дезактивирующего раствора;
- температуры дезактивирующей среды.

Таблица 5

Коэффициент экранирования ультразвуковых волн некоторыми материалами при обработке нержавеющей стали в течение 1 мин

Вид загрязнения	Экранирующий материал	Коэффициенты экранирования					
		Дезактивирующий раствор					
		ЛАБСК		Р-2		КОМПО К КЛИН 1	
		Температура, °С					
		20±2	60±2	20±2	60±2	20±2	60±2
α	Стекло	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
	Полипропилен	0,33	0,39	0,99	1,10	3,02	0,37
	Полиэтилен	0,26	0,31	0,41	0,83	1,44	0,04
	Пластикат	0,14	0,37	0,42	0,98	1,12	0,05
β	Стекло	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
	Полипропилен	0,34	0,53	0,98	0,81	1,84	0,33
	Полиэтилен	0,27	0,32	0,50	1,15	1,23	0,03
	Пластикат	0,12	0,42	0,47	1,14	0,74	0,07

Таблица 6

Коэффициент экранирования ультразвуковых волн некоторыми материалами при обработке углеродистой стали в течение 1 мин

Вид загрязнения	Экранирующий материал	Коэффициенты экранирования					
		Дезактивирующий раствор					
		ЛАБСК		Р-2		КОМПО К КЛИН 1	
		Температура, °С					
		20±2	60±2	20±2	60±2	20±2	60±2
α	Стекло	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
	Полипропилен	1,07	5,32	0,40	1,71	0,74	1,41
	Полиэтилен	0,58	—	2,61	—	0,45	—
	Пластикат	1,42	1,93	0,27	—	0,21	0,17
β	Стекло	1,00	—	1,00	1,00	1,00	1,00
	Полипропилен	1,38	—	0,45	0,68	0,65	0,38
	Полиэтилен	0,28	—	2,68	—	0,34	—
	Пластикат	1,11	—	0,27	0,46	0,29	0,17

# ОЦЕНКА ЭКРАНИРУЮЩЕГО ЭФФЕКТА ИССЛЕДУЕМЫХ МАТЕРИАЛОВ

На основании полученных результатов были составлены таблицы, в которых приведены коэффициенты экранирования УЗ для исследованных полимерных материалов и стекла, рассчитанные по формуле:

$$K_{\text{экp}} = K_{\text{д,ст}} / K_{\text{д,г}}$$

где  $K_{\text{экp}}$  – коэффициент экранирования;  
 $K_{\text{д,ст}}$  – коэффициент дезактивации конструкционных материалов при использовании стекла в качестве экранирующего;  
 $K_{\text{д,г}}$  – коэффициент дезактивации сравниваемого со стеклом экранирующего материала.

Приведённые в табл. 5 и 6 коэффициенты экранирования носят условный характер, поскольку показывают степень экранирования по сравнению со стеклом. Стекло было выбрано в качестве числителя в формуле, поскольку большинство производителей УЗ оборудования рекомендуют в случае необходимости использовать в качестве материала внутренних ёмкостей именно стекло. При выборе материала ёмкости для загрузки отмываемых изделий необходимо выбирать материал с наименьшим значением коэффициента экранирования.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе выполнения работы была исследована эффективность дезактивации конструкционных материалов погружным методом в растворах ЛАБСК, "КОМПО К КЛИН 1" и Р-2 при наложении ультразвука.

Показано, что конструкционные материалы, имеющие радиоактивное загрязнение поверхности, соответствующее уровню САО (среднеактивные отходы), можно практически полностью дезактивировать с использованием ультразвука за 10 мин. Максимальное остаточное загрязнение не превышало 180  $\alpha$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ) и 300  $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ). Данный уровень загрязнения  $\beta$ -излучающими нуклидами, согласно принятым на ФГУП "ПО "Маяк" контрольным уровням радиационной безопасности, соответствует нормам допустимого загрязнения технологического оборудова-

ния, бывшего в употреблении и хранящегося на открытых площадках основных заводов ФГУП "ПО "Маяк".

На основании результатов исследований кавитационного разрушения алюминия экспериментально доказано существование эффекта экранирования УЗ волн. Показано, что потеря массы алюминиевой фольги снижается до 5 раз при  $20 \pm 2$  °С и до 1,6 раз при  $60 \pm 2$  °С при её ультразвуковой обработке в воде через стенку стеклянного или полипропиленового стаканов.

Установлено, что эффект экранирования одного и того же материала проявляется в разной степени в зависимости от типа загрязнения ( $\alpha$ - или  $\beta$ -радионуклидами), вида конструкционного материала (углеродистая или нержавеющая сталь) и химического состава раствора.

Определено, что факторы, влияющие на эффективность УЗ дезактивации (состав дезраствора, его температура, физико-химические свойства и др.) взаимосвязаны друг с другом таким образом, что изменение одного из них может приводить к изменению еще нескольких. В связи с этим выделить четкую зависимость эффективности дезактивации от состава используемого дезраствора, температуры и конкретного вида экранирующего материала не представлялось возможным.

Наблюдаемый экранирующий эффект в большинстве экспериментов проявлялся при небольшом времени УЗ обработки. При увеличении длительности озвучивания до 10 мин при использовании одного и того же раствора уровни остаточного загрязнения имели близкие значения.

Повышение температуры дезактивирующей среды до  $60 \pm 2$  °С в случае дезактивации растворами ЛАБСК, Р-2 позволяет существенно сократить время дезактивации до контрольных уровней независимо от вида экранирующего материала. При использовании "КОМПО К КЛИН 1" повышение температуры незначительно снижает время обработки и эффективность дезактивации.

При организации технологического процесса УЗ дезактивации для каждого конкретного случая целесообразно подбирать оптимальный вид материала для изготовления вставных ванн, позволяющий обеспечить минимальные коэффициенты экранирования.

УДК 621.039.8.002

© 2021

**ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ВЫЩЕЛАЧИВАНИЯ  
БОРОСИЛИКАТНЫХ СТЕКОЛ ДЛЯ РАДИОНУКЛИДНЫХ  
ИСТОЧНИКОВ С ЦЕЛЬЮ ОЦЕНКИ РАДИАЦИОННОГО  
ВОЗДЕЙСТВИЯ НА ХИМИЧЕСКУЮ СТОЙКОСТЬ СТЕКЛА  
ПРИ ДЛИТЕЛЬНОМ ХРАНЕНИИ**

*А.Г. Харлова, Е.В. Лызлова, А.В. Конников, М.А. Литвинова  
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Объектами исследований являлись синтезированные на ФГУП "ПО "Маяк" в 1992 и 2003 годах стронциевые стекла, предназначенные для изготовления радионуклидных источников тепла и термоэлектрических генераторов. Изучаемые стекла со значительным содержанием  $^{90}\text{Sr}$  за время хранения подверглись самооблучению до поглощённых доз  $1,36 \cdot 10^{11}$  и  $0,71 \cdot 10^{11}$  Гр соответственно.

В результате испытаний установлено, что скорости выщелачивания по стронцию для монолитных образцов имитационного стронций-боросиликатного стекла составили от  $3,8 \cdot 10^{-5}$  до  $7,4 \cdot 10^{-4}$  г/(см<sup>2</sup>·сут), для образцов измельчённого стекла от  $1,4 \cdot 10^{-4}$  до  $2,0 \cdot 10^{-3}$  г/(см<sup>2</sup>·сут). Для монолитных образцов имитационного стронций-бериллий-боросиликатного стекла скорость выщелачивания по стронцию составила от  $3,9 \cdot 10^{-4}$  до  $2,1 \cdot 10^{-4}$  г/(см<sup>2</sup>·сут), для образцов измельчённого стекла – от  $2,1 \cdot 10^{-4}$  до  $2,5 \cdot 10^{-4}$  г/(см<sup>2</sup>·сут). Скорости выщелачивания по  $^{90}\text{Sr}$  гранулятов активных стёкол с размером фракции 3–4 мм составили  $3,2 \cdot 10^{-6}$  г/(см<sup>2</sup>·сут) для стронций-боросиликатного стекла,  $4,0 \cdot 10^{-4}$  г/(см<sup>2</sup>·сут) – для стронций-бериллий-боросиликатного стекла.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:**  $^{90}\text{Sr}$ , ВЫЩЕЛАЧИВАНИЕ, СТРОНЦИЙ-БОРОСИЛИКАТНОЕ СТЕКЛО, СТРОНЦИЙ-БЕРИЛЛИЙ-БОРОСИЛИКАТНОЕ СТЕКЛО, РАДИОНУКЛИДНЫЕ ИСТОЧНИКИ ТЕПЛА, РАДИОИЗОТОПНЫЕ ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ГЕНЕРАТОРЫ

Стекла, в том числе боросиликатные, достаточно часто используются в радиохимическом производстве в качестве матрицы, включающей в себя радионуклиды, с целью их дальнейшего безопасного использования и хранения. Радиационно-химическая устойчивость является одним из наиболее важных параметров, характеризующих матрицу. При изучении поведения модельных составов стёкол часто используют метод облучения образцов стекла внешним источником, что может давать не всегда корректные результаты. Особый интерес представляют результаты исследования поведения реальных активных боросиликатных стёкол, подвергшихся значительному радиационному воздействию до поглощённых доз облучения более  $10^5$  Гр.

Целью настоящей работы являлось исследование выщелачивания стронция из имитационного и активного стёкол для оценки радиационного воздействия на химическую стойкость стекла при длительном хранении.

Задачами проведённых исследований являлись:

- проведение испытаний на выщелачивание имитационного и активного стёкол;
- микроскопическое исследование поверхностного слоя имитационного стекла после выщелачивания;
- сравнительный анализ химической устойчивости имитационного и активного стёкол;
- сравнение результатов испытаний активного стекла для радионуклидных источ-

ников и имитаторов стёкол ВАО опытно-демонстрационного центра Горно-химического комбината г. Железногорска (ОДЦ ГХК).

# МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

В работе использовались активное стронций-боросиликатное стекло, изготовленное для радионуклидных источников тепла (РИТ) и радиоизотопных термоэлектрических генераторов (РИТЭГ) в 1992 г., и его имитатор, а также активное бериллий-боросиликатное стекло, изготовленное для источников БИС-МНА, БИС-МНБ в 2003 г., и его имитатор.

Синтез имитационных стёкол соответствовал производственной технологии изготовления активных стёкол. В работе использовались реактивы той же квалификации, что и при синтезе активных стёкол. Синтез имитационного стекла проводили в алуновом тиглях вместимостью 500 см<sup>3</sup>, в электропечи SNOL 1300/7,2. Компонентные составы стёкол приведены в табл. 1.

По окончании варки полученное стекло быстро разливали в заранее нагретые графитовые формы, которые затем устанавливали в разогретую до 480° С печь SNOL 1300/7,2 для проведения процедуры отжига. Часть стекла, разлитого в формы и прошедшего отжиг, измельчали в фарфоровой ступке. При помощи сита отсеивали фракцию от 0,16 до 0,25 мм. Из отсеянного стекла готовили навески, которые использовали в испытаниях на гидrolитическую устойчивость. Навеску измельчённого стекла передавали на рентгено-флюоресцентный анализ (РФА), который проводили на дифрактометре ДРОН-4.

Результаты РФА показали, что образцы

стекла рентгеноаморфны, не содержат кристаллических включений и ликвационных зон и пригодны для дальнейшей экспериментальной работы.

Определение плотности стекла проводили пикнометрическим методом по формуле:

$$\rho = \frac{m}{V} = \frac{m}{M_0 - M + m} \cdot \rho_0, \quad (1)$$

где  $m$  – масса исследуемого образца, г;

$M_0$  – масса пикнометра с толуолом, г;

$\rho_0$  – плотность толуола при температуре опыта, г/см<sup>3</sup>;

$M$  – масса пикнометра с образцом и толуолом, г.

Определение плотности стеклянных монокристаллических образцов проводили при температуре 21° С. В процессе измерений в пикнометр с пробкой наливали 50 см<sup>3</sup> толуола и взвешивали его на аналитических весах. Взвесив образец стекла, его помещали в пикнометр и заливали толуолом до метки в 50 см<sup>3</sup>, затем закрывали пробкой. Взвешивали пикнометр со стеклом и толуолом на весах. Плотность толуола при данной температуре составила 0,867 г/см<sup>3</sup>.

Среднее значение плотности стекла составило 3,56 г/см<sup>3</sup>, что хорошо согласуется с литературными данными сборника [1]. Согласно литературным данным плотность стронций-боросиликатного стекла (с содержанием оксида стронция 60 % масс.) находится в диапазоне от 3,4 до 3,7 г/см<sup>3</sup>.

Суммарную площадь поверхности образцов навески измельчённого стекла  $S_{\Pi}$ , см<sup>2</sup>, вычисляли по формуле:

$$S_{\Pi} = \frac{6}{D_y \cdot \rho} \cdot m_n, \quad (2)$$

где  $D_y$  – условный диаметр частиц порошка, см;

$m_n$  – масса навески, г.

Таблица 1

Компонентный состав шихты стронций-боросиликатного стекла и стронций-бериллий-боросиликатного стекла в пересчёте на оксиды элементов

Тип стекла	Массовая доля компонентов шихты стекла, %					
	SrO	BeO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
Стронций-боросиликатное стекло	63	–	5,5	14	14	3,5
Стронций-бериллий-боросиликатное стекло	63	3,5	–	14	14	3,5



В качестве методики определения скорости выщелачивания принимали стандарт ASTM-1285-94 "Стандартные методы для определения химической устойчивости стеклоподобных ядерных отходов: определение качества продукта".

Перед началом работы каждый из образцов монолитного стекла промывали в 100 см<sup>3</sup> деионизированной воды, затем в 100 см<sup>3</sup> этилового спирта. Время промывки в каждой стадии составляло 2–3 мин. По окончании промывки образцы высушивали на воздухе. Порцию измельчённого стекла промывали на сите с размером ячейки 0,16 мм последовательно деионизированной водой и этиловым спиртом, после чего высушивали на воздухе.

Для испытаний на выщелачивание взвешивали подготовленные образцы монолитного и измельчённого стекла и помещали их в тefлоновые контейнеры с крышками. В контейнер наливали деионизированную воду, устанавливали в камеру термостата и выдерживали при температуре 90±2 °С непрерывно в течение семи суток.

По истечении времени выдержки контейнер с исследуемым материалом извлекали из термостата, фильтровали раствор из каждого контейнера, отбирали пробу фильтрата для проведения анализа на содержание стронция методом ICP масс-спектрометрии на приборе Agilent 7500 CX.

В ходе проведения испытаний периодически визуально оценивали состояние образцов.

Исследования микроструктуры образцов измельчённого стекла до и после выщелачивания проводили с использованием оптико-цифрового микроскопа DSX510 фирмы OLYMPUS и сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) Mira3 LMN фирмы TESCAN.

В экспериментах по выщелачиванию активного стекла использовали гранулят боросиликатного стекла, изготовленного в 1992 г., и гранулят стронций-бериллий-боросиликатного стекла, синтезированного в 2003 г. В испытаниях использовали самую крупную фракцию стекла размером от 3 до 4 мм. Составы стёкол соответствовали значениям, приведённым в табл. 1 и 2.

Отбор фракции осуществляли при помощи сит в горячей камере. Отсеянную фракцию

на сите промывали дистиллированной водой, затем этиловым спиртом. Промытый гранулят высушивали в течение суток при температуре окружающей среды камеры. После чего отбирали навески гранулята с погрешностью ±0,1 г в стеклянные колбы вместимостью 300 см<sup>3</sup>. В колбы с гранулятом приливали 250 см<sup>3</sup> деионизированной воды.

Колбы с навесками гранулята устанавливали на дно соляной бани и производили обсыпку колб порошком хлорида натрия, так, чтобы уровень обсыпки солью совпадал с уровнем воды в колбах. Засыпка бани порошком хлорида натрия была выбрана для облегчения в дальнейшем утилизации образующихся во время экспериментов радиоактивных отходов.

Контроль температуры осуществляли при помощи термопары типа ТХК-КИ-04, установленной в центре соляной бани.

Поддержание температуры выщелачивания проводили посредством микропроцессорного измерителя-регулятора технологического типа ИРТ 1730 Д/М и пускателя магнитного с термозащитой типа ПМЛ. Температура рабочей среды при выщелачивании составляла 90±2 °С.

Испытания проводили непрерывно в течение 7 сут для образца стекла 1992 года и 9 сут для образца стекла 2003 года при указанной температуре.

В ходе испытаний произошло две разгерметизации колбы с образцом стекла 2003 года, связанные с повышенным газообразованием за счёт радиолиза, на короткий, не более 15 мин, промежутки времени. Колба с образцом стекла 1992 года на протяжении всего эксперимента была герметичной.

По окончании времени испытания нагрев соляной бани выключали, колбу с образцом извлекали, доводили объём раствора в колбе до 250 см<sup>3</sup> деионизированной водой. После остывания раствора в колбе отбирали пробы на содержание <sup>90</sup>Sr в стеклянные пробирки. Пробы помещали в защитный контейнер и выдерживали для установления равновесия "стронций-90 + иттрий-90" в течение 30 сут. После чего проводили определение содержания <sup>90</sup>Sr в растворах согласно существующей на предприятии методике на сцинтилляционном спектрометре энергии β-излучения БЭТА-1С № 01-50.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В результате проведения экспериментов по выщелачиванию образцов имитационного стекла установлено, что через 6 сут выдержки внешний вид образцов изменился – стекло стало матовым с пятнами молочного оттенка. Внешний вид образцов стронций-боросиликатного стекла до и после выщелачивания приведён на рис. 1 (образцы 1, 2, 3 – монолитные таблетки, образец 4 – порошок в контейнере для выщелачивания). Образцы стронций-бериллий-боросиликатного стекла выглядели аналогично до и после выщелачивания.

Внешний вид образцов измельчённого имитационного стронций-боросиликатного стекла до и после выщелачивания при исследованиях на оптико-цифровом микроскопе приведён на рис. 2.

На рис. 2 видно, что поверхность стекла до выщелачивания была прозрачная и блестящая,

со следами царапин и сколов, возникших при измельчении. На поверхности видны пылевидные частицы стекла, отсев которых не произошёл, вследствие их сильной электризуемости. После выщелачивания поверхность стекла стала матовой, что говорит об изменении структуры поверхностного слоя.

Микрофотографии образцов измельчённых имитационных стёкол до и после выщелачивания, полученные с помощью СЭМ, приведены на рис. 3 и 4.

На микрофотографиях, приведённых на рис. 3, видно, что частицы исходного стекла имеют гладкую, однородную по структуре поверхность. На микрофотографиях образцов стёкол после выщелачивания, приведённых на рис. 4, хорошо видно растрескивание поверхностного слоя и неоднородность структуры его поверхности. Также на рис. 3 и 4 видно, что помимо частиц рабочей фракции (размером около 0,2 мм) в образцах как до, так и после выще-

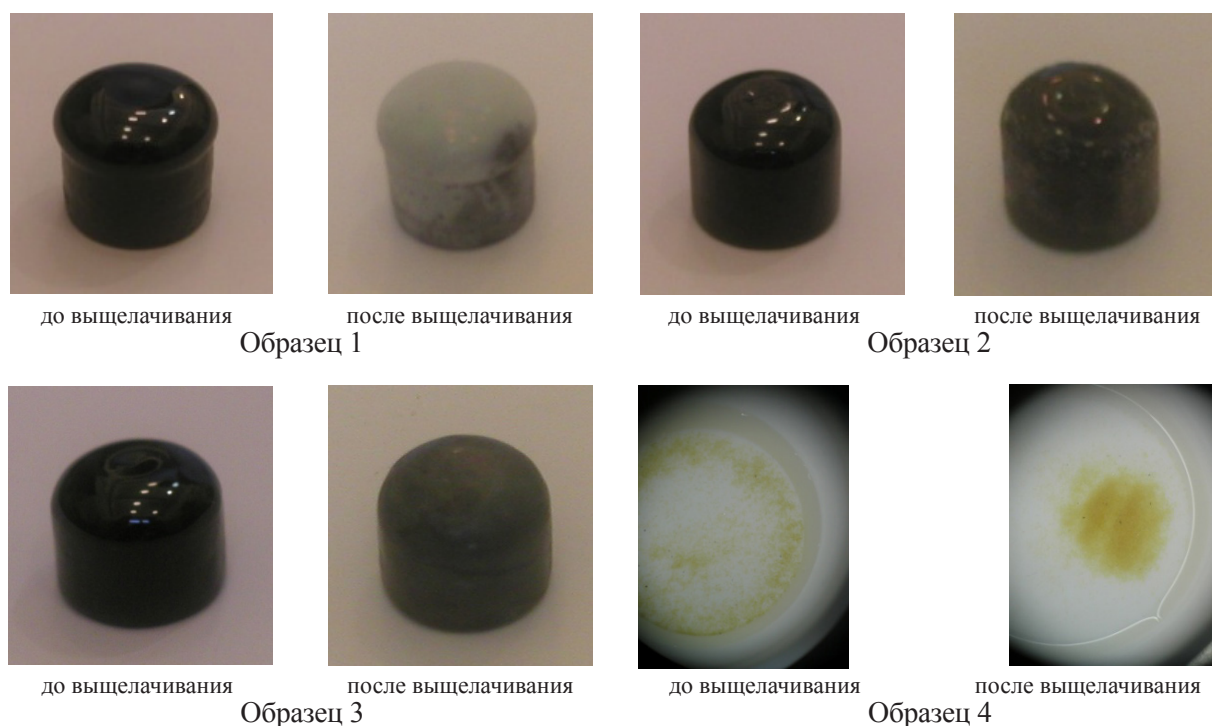
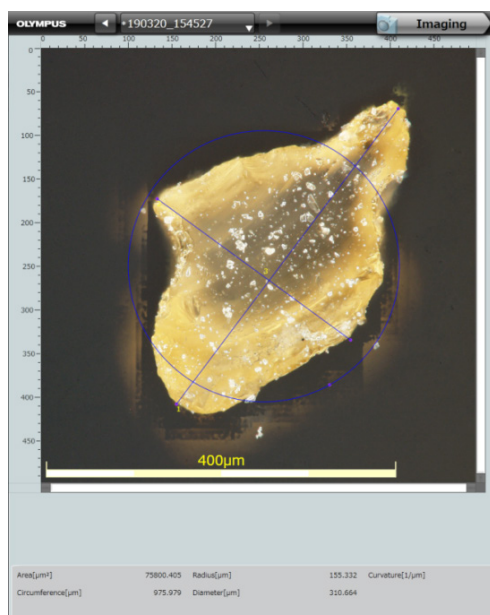
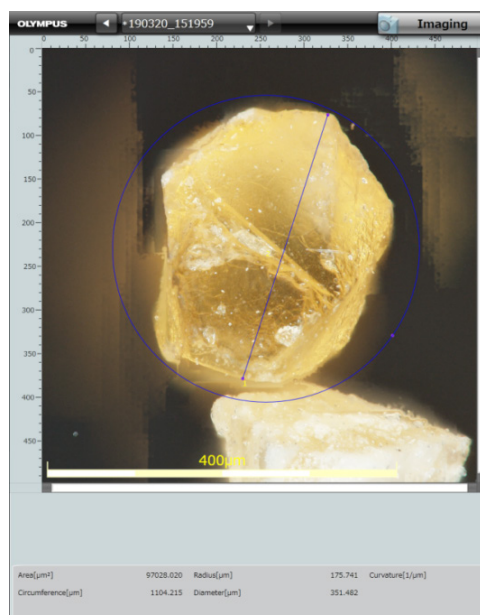


Рис. 1. Примеры внешнего вида образцов стронций-боросиликатного стекла до и после выщелачивания

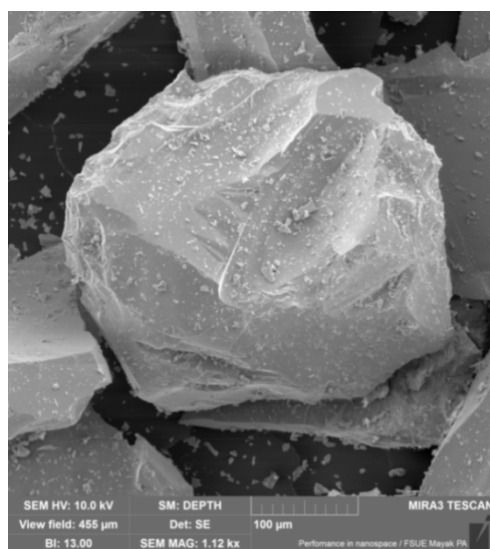


А

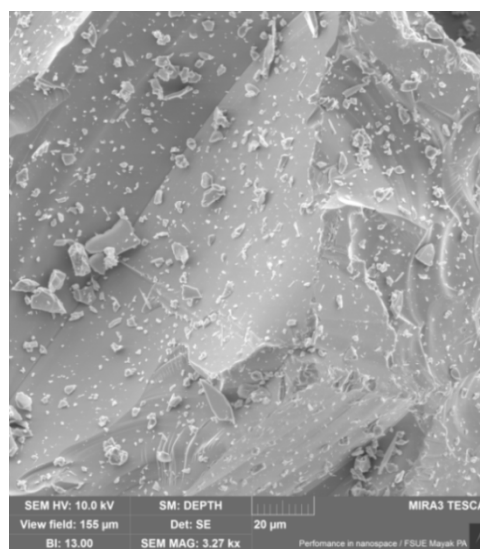


Б

Рис. 2. Изображения образцов измельчённого стекла до и после выщелачивания, полученные на оптико-цифровом микроскопе: А – исходные образцы стекла; Б – образцы стекла после выщелачивания

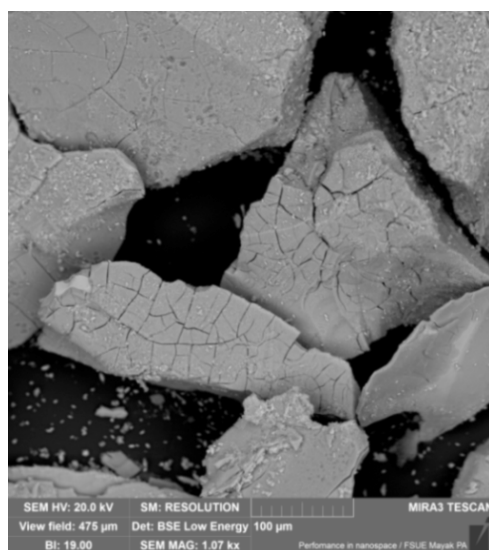


А

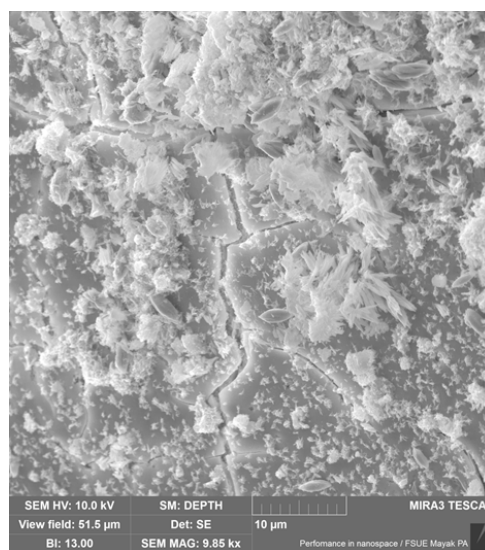


Б

Рис. 3. Микроструктуры исходных образцов измельчённого имитационного стекла, полученные на СЭМ Mira3 LMH TESCAN



А



Б

Рис. 4. Микроструктуры измельчённых образцов имитационного стекла после выщелачивания, полученные на СЭМ Mira3 LMH TESCAN

лачивания присутствуют частицы стекла размером от 0,1 мкм до 10,0 мкм. Наличие мелких частиц, а также микротрещин на поверхности стекла существенно увеличивает площадь выщелачивания.

Исследования морфологии и структуры стёкол до и после выщелачивания с применением СЭМ показали, что в процессе испытаний на выщелачивание произошла деградация части частиц, в результате чего на поверхности образовались микротрещины из-за механического разрушения поверхностного слоя в результате измельчения частиц стекла и последующего вымывания его компонентов. На рис. 4 при большом увеличении хорошо заметны конгломераты разной формы, образовавшиеся на поверхности в процессе температурного и химического воздействия в растворе.

Скорости выщелачивания по стронцию для исследованных образцов стёкол приведены в табл. 2.

В сборнике [1] приводятся данные о скорости выщелачивания близких по составу стронций-боросиликатных стёкол с массовой долей оксида стронция от 50 до 70 %. Согласно литературным данным, при кипячении данных

образцов с размером фракции от 0,1 до 0,2 мм в дистиллированной воде в течение часа скорость выщелачивания составляла от  $1 \cdot 10^{-4}$  до  $3 \cdot 10^{-4}$  г/(см<sup>2</sup>·сут).

Согласно данным публикации [2], для составов боросиликатных стёкол, имитирующих остеклованные жидкие ВАО ОДЦ ГХК, скорость выщелачивания по стронцию составляла от  $1,99 \cdot 10^{-6}$  до  $8,6 \cdot 10^{-6}$  г/(см<sup>2</sup>·сут), но массовая доля оксида стронция в этих имитаторах не превышала 10 %.

Для определения причин возможных изменений внешнего вида образцов проводили дополнительные исследования с использованием метода РФА.

РФА поверхностного слоя образцов показал, что стекло не изменило аморфную форму, кристаллизации в изменённом поверхностном слое не произошло. Таким образом, можно предположить, что наблюдаемые изменения поверхностного слоя вызваны механическим разрушением при растрескивании поверхностного слоя. Результаты испытаний по выщелачиванию образцов активного стекла приведены в табл. 3.

Испытанные составы образцов активного



Таблица 2

Скорости выщелачивания по стронцию исследованных образцов стёкол

Тип стекла	Фракция	Скорость выщелачивания по стронцию, г/(см <sup>2</sup> ·сут)
Стронций-боросиликатное	монолитное	$3,8 \cdot 10^{-5} - 7,4 \cdot 10^{-4}$
	измельчённое	$1,4 \cdot 10^{-4} - 2,0 \cdot 10^{-3}$
Стронций-бериллий-боросиликатное	монолитное	$3,9 \cdot 10^{-4} - 2,1 \cdot 10^{-4}$
	измельчённое	$2,1 \cdot 10^{-4} - 2,5 \cdot 10^{-4}$

Таблица 3

Результаты испытаний образцов активного стекла на выщелачивание

Характеристики	Тип стекла	
	Стронций-боросиликатное стекло	Стронций-бериллий-боросиликатное стекло
Дата синтеза стекла	27.04.1992	03.12.2003
Исходная удельная активность стекла по стронцию, Ки/г	32,3	26
Удельная активность стекла по стронцию на дату эксперимента (14.07.2019), Ки/г	16,9	18,27
Накопленная поглощённая доза, Гр	$1,36 \cdot 10^{11}$	$0,71 \cdot 10^{11}$
Масса навески гранулята стекла, г	1,65	1,81
Площадь поверхности навески, см <sup>2</sup>	7,95	8,72
Время выщелачивания, сут	7	9
Содержание <sup>90</sup> Sr в растворе, Бк/см <sup>3</sup>	$4,49 \cdot 10^5$	$7,6 \cdot 10^7$
Объём раствора, см <sup>3</sup>	250	250
Скорость выщелачивания, г/(см <sup>2</sup> ·сут)	$3,2 \cdot 10^{-6}$	$4,0 \cdot 10^{-4}$

стекла были идентичны по содержанию целевого компонента и стеклообразователей, отличались только присутствием оксида алюминия в составе 1992 года и оксида бериллия в составе 2003 года. Кроме того, различными были собственное радиационное воздействие и удельная активность стекла, а также накопление продуктов распада стронция за время хранения стекла. Накопленную поглощённую дозу в образцах активных стёкол, изготовленных в 1992 и 2003 годах, определяли по графику зависимости удельного энерговыделения от времени выдержки (площадь под кривой), представленного на рис. 5.

Рассчитанная накопленная поглощённая доза для стронций-боросиликатного стекла составила  $1,36 \cdot 10^{11}$  Гр, для стронций-бериллий-боросиликатного стекла –  $0,71 \cdot 10^{11}$  Гр.

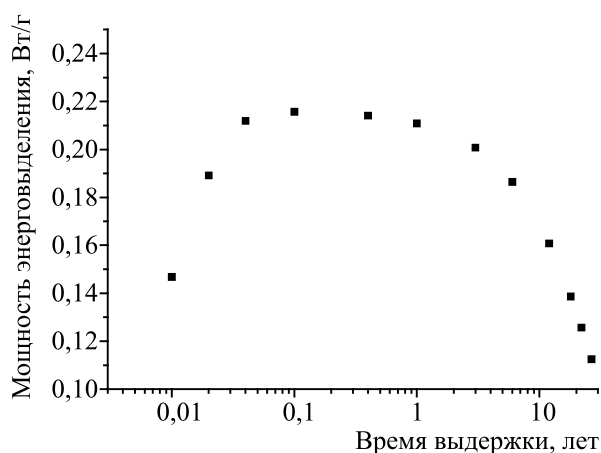


Рис. 5. Зависимость удельного энерговыделения от времени выдержки

Результаты экспериментов показали, что скорость выщелачивания стронций-боросиликатного стекла составила  $3,2 \cdot 10^{-6}$  г/(см<sup>2</sup>·сут), стронций-бериллий-боросиликатного стекла –  $4,0 \cdot 10^{-4}$  г/(см<sup>2</sup>·сут). Очевидно, что химический состав стекла влияет на его гидролитическую устойчивость. Сравнительный анализ результатов экспериментов по выщелачиванию указывает на более высокую устойчивость активного стекла по сравнению с имитационным составом. Данное явление неоднократно описано в литературе и может быть объяснено снижением значения pH контактного раствора под действием радиационных полей и множеством других факторов [3].

Сравнение результатов испытаний активного стекла для РИТ (скорость выщелачивания по стронцию составила  $3,2 \cdot 10^{-6}$  г/(см<sup>2</sup>·сут)) и имитаторов стёкол ВАО ОДЦ ГХК (скорости выщелачивания по стронцию составили от

$1,99 \cdot 10^{-6}$  до  $8,6 \cdot 10^{-6}$  г/(см<sup>2</sup>·сут)) показало, что исследованные образцы активных стёкол обладают химической стойкостью одного порядка.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Богданов Н.И. Мощные источники ионизирующего излучения на основе <sup>90</sup>Sr: сборник статей "Производство изотопов". – М.: Атомиздат, 1973. – С. 418–427.
2. Алой А.С., Трофименко А.В, Кольцова Т.И., Никандрова М.В. Физико-химические характеристики остеклованных модельных ВАО ОДЦ ГХК // Радиоактивные отходы. – 2018. – № 5. – С. 67–75.
3. Механизм фиксации высокоактивных отходов в изменённом поверхностном слое боросиликатного стекла: дисс... на соискание уч. степ. канд. хим. наук / СПбГУ; соискатель Никандрова М.В. – СПб, 2015. – 155 с.



УДК 621.039.59

© 2021

## ОБЗОР СУЩЕСТВУЮЩИХ ТЕХНОЛОГИЙ РАСТВОРЕНИЯ УРАН-ЦИРКОНИЕВОГО ОЯТ

*В.С. Ермолин, М.В. Логунов, Ю.А. Ворошилов, А.В. Конников, С.А. Лукин  
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Переработка уран-циркониевого топлива является одной из сложнейших задач, стоящих перед любым заводом по переработке ОЯТ, в том числе и перед заводом РТ-1, входящим в состав ФГУП "ПО "Маяк". Это топливо не растворяется напрямую в азотной кислоте и в связи с этим необходим поиск возможных альтернативных решений, направленных на перевод уран-циркониевой композиции в азотнокислый раствор.

Цель обзора – анализ литературных источников, посвящённых исследованиям различных способов растворения цирконийсодержащих материалов.

Проведённый обзор литературных источников показал, что растворение цирконийсодержащих материалов – весьма неординарная задача, не имеющая простых решений. В большинстве описанных способов используются коррозионноопасные агенты. Причём применение таких веществ на начальных стадиях процесса переработки ОЯТ приводит к их перераспределению по всей технологической цепочке, что усиливает коррозию оборудования всего перерабатывающего производства.

Тем не менее внедрение на уровне полупромышленных установок нашли только способы, основанные на использовании фторид-ионов, обладающие указанными выше недостатками с подбором условий, нивелирующих (или минимизирующих) высокую коррозионную активность применяемых растворов.

Как показал обзор, в США проблема поиска более приемлемых вариантов растворения цирконийсодержащих материалов также является актуальной и по сей день. В частности, прорабатывается способ высокотемпературной дистилляции галогенидов циркония с целью отделения этого металла в отдельный поток на начальных стадиях процесса переработки ОЯТ.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ЦИРКОНИЙ, УРАН, УРАН-ЦИРКОНИЕВЫЙ СПЛАВ, ОЯТ, АЗОТНАЯ КИСЛОТА, РАСТВОРЕНИЕ, ФТОРИД-ИОН, КОРРОЗИЯ

Оценивая международный опыт исследований в области переработки уран-циркониевого топлива, можно сделать вывод, что регенерация этого ОЯТ крайне сложна. Это связано с тем, что металлический цирконий быстро покрывается плёнкой оксида циркония, которая крайне медленно реагирует с азотной кислотой и эффективно предотвращает дальнейшее растворение циркония (например, массовая доля перешедшего в раствор металлического циркония в азотной кислоте с концентрацией 8 моль/дм<sup>3</sup> при кипении составляет 0,1 % за 5 ч [1]). В связи с этим исследователи разных стран искали различные пути перевода цирконийсодержащих материалов в азотнокислые растворы. Основные известные варианты показаны на

рисунке. Информация об этих способах представляет интерес и для специалистов ФГУП "ПО "Маяк", где также возникла потребность переработки ОЯТ с уран-циркониевым сплавом.

Далее приведено более подробное описание способов, перечисленных на рисунке.

Первыми описаны варианты растворения цирконийсодержащих материалов или выщелачивания из них урана, исследованные в основном только в лабораторных условиях.

Так, в источниках [2–3] рассмотрена возможность **электрохимического растворения** изделий из циркония. Отмечено, что процесс происходит при температурах не менее 50 °С. При этом скорость анодного разрушения возрастает с ростом концентрации азотной



Рисунок – Направления исследований в области перевода актиноидов из цирконийсодержащих видов ОЯТ в раствор

кислоты и достигает максимума, равного  $44,5 \text{ мг}/(\text{см}^2 \cdot \text{ч})$  в азотной кислоте с концентрацией  $8 \text{ моль}/\text{дм}^3$  при  $80^\circ \text{C}$ .

Отмечено, что только часть циркония переходит в раствор, остальная часть образует шлам из диоксида циркония. Этот шлам оседает на дно реакционного сосуда или покрывает растворяемое изделие, что приводит к прекращению протекания электрического тока. Для возобновления электрического контакта требуются встряхивающие или трамбуемые движения токоподвода, что весьма существенно усложняет конструкцию аппаратов-растворителей. Вероятно, по этой причине публикации, свидетельствующие о дальнейшей разработке процесса, в открытой печати отсутствуют.

Среди исследованных способов есть способы **термического окисления** обрабатываемого материала. Например, запатентован способ [4] окисления уран-циркониевых ТВЭЛ при температурах не менее  $1000^\circ \text{C}$  в течение 8–10 ч измельченных уран-циркониевых ТВЭЛ с последующим выщелачиванием урана азотной кислотой. При этом доля растворенного урана достигает от 98 до 99 %.

Известен также метод удаления циркониевых оболочек сжиганием в токе кислорода, получивший название **Termox** [5]. Сердечник также окисляется с образованием триураноксидов, уран затем выщелачивают азотной кислотой.

Как правило, большинство работ направлено на изучение процессов растворения циркония с использованием фторид-ионов. Этот реагент является активатором поверхности металла и одновременно сильным комплексоном циркония. Таким образом, его действие заключается в снятии оксидной пленки и предотвращении её образования.

Так, известен способ [5], заключающийся в растворении циркония в смесях **плавиковой и серной кислот**. Сведения об этом способе весьма ограничены. Вероятно, это вызвано очевидной бесперспективностью исследований в области применения таких растворов. Это обусловлено их наиболее высокой коррозионной активностью по сравнению со всеми другими растворами, применяемыми для растворения цирконийсодержащих материалов.

Способ растворения в растворах, содержа-

щих фториды аммония или щелочных металлов и лимонную кислоту, получивший название **Citriflex**, судя по количеству опубликованных работ ([5–7]), изучался несколько более детально. По итогам исследований был определён состав исходного реагента-растворителя – в него должен входить фторид аммония с концентрацией 90–110 г/дм<sup>3</sup> и лимонная кислота с концентрацией 2,5 моль/дм<sup>3</sup>. Концентрация циркония в получаемом растворе не должна превышать 90 г/дм<sup>3</sup>. При растворении изделий из циркалоя (сплав циркония и олова с массовой долей олова 2 %) в конце растворения необходимо вводить азотную кислоту до концентрации 1 моль/дм<sup>3</sup> для предотвращения выпадения осадков на основе олова.

Согласно отчёту [8], для снятия циркониевых оболочек ТВЭЛ с топливной композицией из диоксида урана, может применяться **плавиковая кислота** с концентрацией 9 моль/дм<sup>3</sup>. Процесс происходит в течение 2 ч, при этом выделяемая газовая фаза состоит из водорода. Массовая доля потерь урана с полученным раствором может достигать 3,4 %. Далее этот раствор сливают и заливают азотную кислоту с концентрацией 8 моль/дм<sup>3</sup> для растворения сердечника из диоксида урана.

В другом источнике [9] описывается способ растворения сплава урана с циркалом-2 (массовая доля урана в сплаве от 2 до 3 %), в котором применяется плавиковая кислота с концентрацией 5 моль/дм<sup>3</sup>. Процесс проводят при температуре от 60 до 80 °С в аппарате с восходящим потоком и при мольном отношении фторид-ионов к цирконю, приблизительно равном 4,5.

При этом существенная (до 30 %) часть урана выпадает в осадок и налипает на стенки реакционного сосуда, что приводит к необходимости периодической остановки и зачистки оборудования. Во избежание этого в реакционную смесь вводят небольшое количество окислителя, например, азотную кислоту, пероксид водорода или нитрат алюминия.

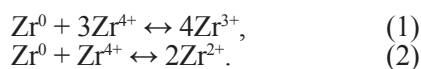
Процесс проводят в оборудовании из монеля – сплаве никеля и меди с массовой долей никеля до 67 %. Среди недостатков способа можно отметить необходимость строгого соблюдения оптимального мольного отношения фторид-ионов и циркония во избежание вы-

падения осадков. При соблюдении условий получаемые растворы проявляют агрегативную устойчивость в течение нескольких месяцев.

Способ растворения уран-циркониевых сплавов в плавиковой кислоте нашёл промышленное применение. Например, он использовался при переработке топливной композиции из сплава урана с циркалом (массовая доля урана в сплаве – 2 %, а массовая доля урана-235 в уране – 93 %) [10]. Установка регенерации этого топлива проработала больше года в Айдахо (с января 1965 г. по февраль 1966 г.). Её производительность составляла 515 кг по цирконю в сутки. Перед загрузкой топлива в аппарат-растворитель сначала принимали воду, содержащую бор как нейтронный яд с концентрацией 5 г/дм<sup>3</sup>, а затем принимали плавиковую кислоту с концентрацией от 6,6 до 7,3 моль/дм<sup>3</sup>. Скорость подачи этого реагента составляла 530 дм<sup>3</sup>/ч. Процесс проводили при температуре 65 °С, а его завершение фиксировали по достижении концентрации циркония в растворе около 1 моль/дм<sup>3</sup>, которую определяли по плотности раствора. Затем раствор охлаждали и эрлифтом выдавали в емкостной аппарат, в котором находился нитрат алюминия как комплексон избыточных фторид-ионов.

При пуске установки в состав реагента-растворителя вводили также азотную кислоту с концентрацией 0,03 моль/дм<sup>3</sup> для предотвращения выпадения осадков урана и олова, однако позже выяснилось, что эта добавка существенно усиливает коррозию монеля – конструкционного материала аппарата-растворителя. В результате от использования азотной кислоты отказались. Между тем это не привело к осадкообразованию, что, вероятно, вызвано низкой концентрацией урана и олова в получаемых растворах (концентрация урана в растворах – 1,3 г/дм<sup>3</sup>).

Другой способ [11], вероятно, проверенный только в лабораторном масштабе на необлучённых образцах топлива реактора STR (характеристики топлива не приводятся), заключается в выдержке образцов этого топлива в расплаве **смеси фторидов щелочных металлов и циркония (IV)**. Процесс проводят при температуре от 600 до 800 °С, а скорость растворения составляет как минимум 0,03 г/(см<sup>2</sup>·ч). При этом происходят следующие реакции



На растворяемом изделии постоянно накапливаются осадки, мешающие дальнейшему протеканию процесса. Барботирование через расплав газообразного фтористого водорода или азота, очищенного от кислорода и влаги, позволяет этого избежать – реакция не прекращается.

Любопытны результаты исследований по выбору конструкционного материала реактора для реализации в нём данного способа. С этой целью обосновано применение никеля. Механизм защиты от коррозии заключается в следующем.

Реакция никеля с фторидным расплавом является обратимой. Поэтому в расплав вводят фторид никеля, что смещает равновесие в сторону образования металлического никеля, тем самым подавляется коррозия аппарата.

Одним из наиболее изученных способов растворения цирконийсодержащих материалов является растворение в **азотнофториднокислых растворах**, о чём свидетельствует значительное количество публикаций [1], [12–16]. Так, в отчёте [16] сообщается, что уравнение скорости реакции циркония с плавиковой кислотой имеет первый порядок

$$-\frac{d\text{Zr}}{dt} = k[\text{HF}], \quad (3)$$

где  $d\text{Zr}$  – изменение молярной концентрации циркония, моль/дм<sup>3</sup>;

$dt$  – продолжительность растворения, мин;

$k$  – константа скорости реакции, 1/мин;

$[\text{HF}]$  – молярная концентрация плавиковой кислоты, моль/дм<sup>3</sup>.

Значения констант скорости реакции из уравнения (3) в зависимости от концентрации азотной кислоты и температуры приведены в табл. 1.

Анализируя данные, приведённые в табл. 1, можно отметить, что с ростом температуры скорость реакции растворения материала увеличивается прямо пропорционально. При этом увеличение концентрации азотной кислоты с 8 до 13 моль/дм<sup>3</sup> приводит к повышению скорости реакции на 15 %.

Авторы работы [16] отметили следующие особенности процесса:

- в первые полчаса протекания реакции на её скорость оказывает влияние стартовая концентрация плавиковой кислоты, тогда как в дальнейший период времени на скорость реакции в большей степени оказывает влияние концентрация азотной кислоты,

- растворение при относительно низкой концентрации азотной кислоты, например, 2 моль/дм<sup>3</sup>, сопровождается образованием соединения состава  $\text{ZrF}_4$ , в то время как растворение в концентрированной азотной кислоте, например, 13 моль/дм<sup>3</sup>, сопровождается образованием соединения, в котором молярное отношение фторид-ионов к цирконию составляет 2. Этот эффект может быть использован в реальной технологии для снижения используемого количества фторид-ионов.

При выполнении работы [16] проводились эксперименты по анализу газовой фазы, выделяемой при растворении циркония в азот-

Таблица 1

Константы скорости реакции (3) в зависимости от температуры и концентрации азотной кислоты [16]

Температура процесса, °С	Значения констант скорости реакции (3), 1/мин	
	Концентрация азотной кислоты 8 моль/дм <sup>3</sup>	Концентрация азотной кислоты 13 моль/дм <sup>3</sup>
16,5	Нет данных	9,0
25,5		12,1
35,0		15,5
45,0		20,3
Кипение	99,6	114,2

Таблица 2

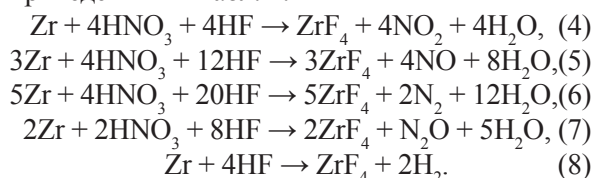
Результаты экспериментов по анализу газовой фазы, выделяемой при растворении циркония в азотнофториднокислых растворах, по данным отчёта [16]

Стартовая концентрация кислоты, моль/дм <sup>3</sup>		Объёмная доля компонента газа, %				
Азотная	Плавиковая	Диоксид азота	Монооксид азота	Азот	Закись азота	Водород
5	0,5	0	83,7	5,5	2,8	8,0
8	1,0	5,1	91,4	0,3	2,9	2,9
13	2,0	54,0	41,9	1,9	0,7	0,7

нофториднокислых растворах. Знание состава газовой фазы необходимо для определения необходимых мер по обеспечению взрывопожаробезопасности процесса. Результаты этих анализов приведены в табл. 2.

В отчёте делается вывод о том, что состав выделяемой газовой фазы зависит от концентрации азотной кислоты в азотнофториднокислой смеси. С другой стороны, из данных, приведённых в табл. 2, это неочевидно – в экспериментах одновременно варьировалась концентрация не только азотной кислоты, но и плавиковой.

Ниже приведены возможные реакции, по которым может происходить выделение газов, приведённых в табл. 2:



Как отмечают авторы работы, образование тетрафторида циркония в реакциях (4)–(8) является гипотетическим и используется для упрощения составления реакций.

Результаты анализа состава выделяемой газовой фазы показали, что реакции (4) и (5) являются доминирующими при растворении в азотной кислоте с концентрацией 13 моль/дм<sup>3</sup>, реакция (5) доминирует при растворении в азотной кислоте с концентрацией от 5 до 8 моль/дм<sup>3</sup>. При снижении концентрации азотной кислоты в составе реагента-растворителя до 5 моль/дм<sup>3</sup> реакция может протекать помимо уравнения (5) и по уравнению (7).

Часть работы посвящена определению условий обеспечения агрегативной устойчивости получаемых растворов. В частности, было

установлено, что при растворении сплава циркалой-2 в растворе, содержащем азотную и плавиковую кислоты с концентрациями 8 моль/дм<sup>3</sup> и 1 моль/дм<sup>3</sup>, соответственно, удаётся предотвратить выпадение осадков. Такой же результат достигается при растворении данного сплава в растворе, содержащем азотную, щавелевую и плавиковую кислоты с концентрациями по 1 моль/дм<sup>3</sup>.

Все способы растворения в азотнофториднокислых растворах характеризуются высокой скоростью коррозии конструкционных материалов аппаратов-растворителей. Отдельные работы были посвящены поиску путей снижения этого показателя.

Так, известен способ [17], в соответствии с которым удовлетворительная (по мнению авторов работы) скорость коррозии нержавеющей стали обеспечивалась организацией процесса растворения азотнофториднокислыми растворами. Это заключалось в следующем: в сосуд, снабжённый мешалкой (оба конструктивных элемента выполнены из стали марки 309SCb, ближайший российский аналог этой стали – сталь марки 20Х23Н13) и содержащий растворяемый материал, заливали азотную кислоту с концентрацией 1 моль/дм<sup>3</sup>. Далее содержимое сосуда нагревали до 70 °С и начинали непрерывно дозировать концентрированную плавиковую кислоту в непосредственной близости от мешалки. Скорость коррозии компонентов оборудования из нержавеющей стали в таком процессе составила 0,65–1,3 мм/год.

В работе [1] вместо плавиковой кислоты предложено использовать фторборную кислоту HBF<sub>4</sub>. Отмечается, что скорость коррозии стекла (конструкционный материал аппарата-растворителя в этой работе) в таких растворах на порядки



меньше, а на скорость растворения циркония замена фторирующего агента не влияет.

В способах [12] и [15] предложено для снижения коррозионного воздействия азотнофториднокислого реагента-растворителя вводить в его исходный состав нитрат алюминия. Алюминий образует комплексы со свободными фторид-ионами, тем самым уменьшается их негативное действие на оборудование. Например, в изобретении [12] предложено в рафинат от экстракционной переработки уран-алюминиевого топлива, содержащий алюминий с концентрацией 20 г/дм<sup>3</sup>, ввести азотную кислоту с концентрацией 10 моль/дм<sup>3</sup> (в объёмном отношении 7 : 1 соответственно) и плавиковую кислоту с концентрацией 27 моль/дм<sup>3</sup>. Главное условие – соблюдение мольного отношения фторид-ионов к алюминию, которое равно 1 : (2–3). Масса растворяемых материалов – из расчёта достижения концентрации циркония в получаемом растворе не более 15 г/л. Растворение проводят при температуре от 70 до 90 °С в течение 6 ч и при непрерывном перемешивании.

В отчёте [18] предложен способ, получивший название **Alniflex**, ориентированный на растворение ОЯТ с топливной композицией из диоксида урана или металлического урана в оболочках из сплавов циркония в аппаратах-растворителях, не имеющих системы удаления твёрдых остатков. Аппарат-растворитель при этом может быть выполнен из нержавеющей стали.

Поставленная задача достигается проведением растворения смесью, содержащей плавиковую, азотную кислоты, нитрат алюминия и бихромат калия с концентрациями 2; 1; 1; 0,1 моль/дм<sup>3</sup> соответственно, при температуре от 70 до 75 °С.

Скорость коррозии нержавеющей стали в таком растворе и при данной температуре составляет всего 0,1 мм/год, а без добавки бихромата калия в 10 раз выше, без введения бихромата калия и нитрата алюминия увеличивается более чем в 1000 раз.

Собственно, процесс заключается в следующем. Растворение начинают в реагенте вышеуказанного состава. Далее, через 8, 12, и 16 ч, вводят плавиковую кислоту с целью доведения её концентрации в составе реагента-рас-

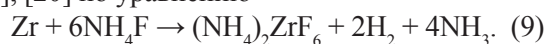
творителя до исходной. Периодически вводят азотную кислоту с целью поддержания концентрации ионов водорода не менее 2 моль/дм<sup>3</sup>. В процессе растворения концентрация циркония не должна превышать 45 г/дм<sup>3</sup>. Этот параметр, а также полнота растворения циркония может контролироваться плотномером.

По окончании растворения циркония в систему должна быть введена азотная кислота с концентрацией 10 моль/дм<sup>3</sup> для растворения топливного сердечника.

Только строгое соблюдение указанных условий позволяет провести процесс растворения без образования осадков фторида алюминия или циркония.

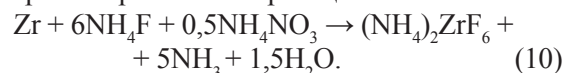
Другим хорошо изученным способом растворения цирконийсодержащего топлива является метод **Zirflex**. Первые публикации с описанием этого способа появились в 1957 году в США. Он заключается в применении для растворения циркония водного раствора фторида и нитрата аммония.

Реакция циркония с фторидом аммония протекает с образованием водорода и аммиака [19], [20] по уравнению



Скорость растворения циркония по такому механизму составляет от 0,3 до 0,4 мм/ч [20].

В присутствии нитрата аммония выделение водорода сокращается. В этом случае растворение протекает по реакции



В экспериментах, описанных в работах [8], [20–23], на образцах облучённого топлива из диоксида урана в оболочках из циркония в условиях горячих камер подтверждена возможность полного растворения оболочек в растворе, содержащем фторид аммония с концентрацией 5,5–6,0 моль/дм<sup>3</sup> и нитрат аммония с концентрацией 0,5–1,0 моль/дм<sup>3</sup>.

Одним из важнейших параметров для данного способа является мольное отношение фторид-ионов к цирконии в системе. По стехиометрии достаточным является отношение, равное 6. Однако полное завершение реакции возможно только при мольном отношении от 6,5 до 7,0. При дальнейшем увеличении параметра повышается скорость растворения. С другой



стороны, это ведёт к необходимости увеличения объёма реагента-растворителя, поскольку без этого при охлаждении раствора в нём происходит кристаллизация солей. Увеличение объёма реагента-растворителя, в свою очередь, вызовет преждевременное выщелачивание урана, что в некоторых случаях является нежелательным. Таким образом, оптимальное мольное отношение равно 7 [20].

Концентрация нитрата аммония  $0,5 \text{ моль/дм}^3$  является оптимальной – она обеспечивает снижение количества выделяемого водорода до  $0,1 \text{ моль/моль}$  растворённого циркония [20]. Учитывая установленное оптимальное мольное отношение фторид-ионов и циркония, указанная концентрация нитрата аммония соответствует мольному отношению нитрата аммония к цирконии  $0,67$ . Увеличение отношения существенно не снижает количества выделяемого водорода, однако приводит к выпадению осадков.

На опытно-промышленном производстве с помощью данного способа проводили растворение оболочек из циркалоя. При этом проводились эксперименты по определению состава выделяющейся газовой фазы. В результате было установлено, что количество выделяемого водорода составляет от  $0,025$  до  $0,030 \text{ моль/моль}$  растворённого циркониевого сплава. Пиковая скорость выделения водорода достигает при-

близительно  $16,3 \text{ см}^3/\text{мин}$  с  $1 \text{ м}^2$  оболочек.

В отчёте [20] также отмечено, что в процессе растворения в растворе накапливается гидроксид аммония, что вызывает повышение pH и снижение температуры кипения. Оба этих фактора приводят к снижению скорости растворения циркония из-за снижения растворимости гексафторцирконата аммония.

Исследованы три способа удаления аммония из раствора [20]. Способ упаривания раствора и способ барботирования через него воздуха показали невысокую эффективность. Наибольший эффект достигнут при подаче в раствор острого пара. При этом за счёт острого пара происходило перемешивание раствора и поддержание его кипения.

Как уже было отмечено, растворы фторид-ионов проявляют высокую коррозионную активность. В связи с этим в работе [20] также исследовали влияние растворов, используемых при растворении методом Zirflex, на скорость коррозии основных марок нержавеющей сталей, применяемых в США. Результаты исследований приведены в табл. 3.

Приведённые в табл. 3 значения свидетельствуют о том, что скорости коррозии нержавеющей сталей при проведении растворения методом Zirflex превышают допустимую границу, принятую на отечественных радиохимических производствах, равную  $0,1 \text{ мм/год}$  [24].

Таблица 3

Скорости коррозии различных марок нержавеющей сталей в кипящем растворе, содержащем фторид и нитрат аммония с концентрациями 6 и  $0,5 \text{ моль/дм}^3$  соответственно

Марка стали США	Маркировка ближайшего аналога стали в РФ или состав в массовых долях, %	Скорость коррозии, мм/год
304-L	03X18H11	3,42
309 SCb	20X23H13 (309S)	2,88
Carpenter 20	06XH28МДТ	1,68
Hastelloy F	Cr – 20 %, Fe – 20 %, Mo – 6 %, Ni – остальное	0,99
Incaloy 804	XH32T (ЭП 670)	1,77
Haynes 25	Хро-Ко-Мо (Co-Cr сплав)	1,65
Ni-O-Nel	Не установлена*	1,32

Примечание. \* Ближайшие аналоги и состав установить не удалось, однако, имеющиеся сведения позволяют предположить, что сплав Ni-O-Nel соответствует по составу сплавам Inconel 718 и ХН45МВТЮБР.

Использование азотной кислоты для растворения сердечников из диоксида урана и осадков, оставшихся от растворения циркониевых оболочек методом Zirflex, существенно повышает коррозию конструкционных сталей аппаратов-растворителей. Однако введение алюминия в значительной степени нивелирует этот процесс. Об этом свидетельствуют данные, приведённые в табл. 4.

Таблица 4

Скорости коррозии стали 304-L (аналогом в РФ является сталь марки 03X18H11) в кипящем растворе, содержащем азотную и плавиковую кислоты, уран с концентрациями 10; 0,08; 0,02 моль/дм<sup>3</sup> соответственно, и алюминий (в виде нитрата) в варьiruемой концентрации

Мольное отношение Al : F	Скорость коррозии, мм/год
6,25	0,59
3,12	0,85
1,00	4,11

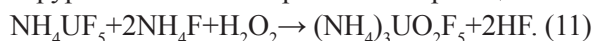
Реализация Zirflex-процесса для уран-циркониевых сплавов несколько отличается от реализации этого процесса для циркониевых оболочек. Это связано с тем, что в процессе растворения уран-циркониевого сплава на его поверхности плотным слоем выпадают зелёные кристаллы тетрафторида урана UF<sub>4</sub> и пентафторурата аммония NH<sub>4</sub>UF<sub>5</sub>. Эти соединения затрудняют доступ реагентов к сплаву, что приводит к существенному замедлению, практически к прекращению процесса растворения.

При растворении уран-циркониевых сплавов с массовой долей урана более 2 % для поддержания урана в растворённом состоянии может применяться 70-ти кратный избыток (мольный) фторид-ионов по отношению к урану [25].

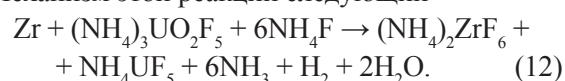
Кроме этого, для предотвращения выпадения осадков на основе урана (IV) при использовании метода Zirflex применяются окислители, например, азотная кислота или пероксид водорода. Применение этих веществ повышает коррозию аппаратов-растворителей, причём наибольший эффект повышения коррозии про-

является при использовании азотной кислоты.

В работе [25] исследовано применение пероксида водорода для предотвращения выпадения осадков. При этом окисление пентафторурата аммония протекает по реакции

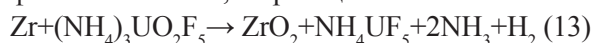


При недостатке пероксида водорода раствор снова приобретает зелёную окраску (которая характерна для соединений урана (IV)). Механизм этой реакции следующий



При повторном введении окислителя окраска раствора быстро меняется на жёлтую (характерна для уранил-ионов).

Также может происходить образование гидратированных или аморфных форм диоксида циркония, не фиксируемых методом рентгенофазового анализа, по реакции



В работе [25] исследовалось влияние различных параметров на кинетику растворения уран-циркониевого сплава методом Zirflex в присутствии пероксида водорода. В частности, установлено, что:

1) изменение концентрации фторида аммония в диапазоне от 4 до 6 моль/дм<sup>3</sup> не оказывает существенного влияния на кинетику растворения. Уменьшение концентрации этого соединения менее 4 моль/дм<sup>3</sup> приводит к быстрому снижению скорости реакции, даже несмотря на избыток фторид-ионов;

2) увеличение массовой доли урана в сплаве с 7 до 93 % приводит к уменьшению скорости растворения сплава с 0,6–0,9 г/(см<sup>2</sup>·ч) до 0,3 г/(см<sup>2</sup>·ч);

3) мольное отношение фторид-ионов, не связанных в комплекс с цирконием, к растворённому урану должно превышать 60. В противном случае происходит выпадение осадков на основе урана, что приводит к снижению скорости растворения сплава;

4) присутствие нитрата аммония позволяет несколько повысить растворимость соединений урана за счёт его окисления из степени окисления +4 до +6, однако этот эффект не существенный и не может использоваться для предотвращения выпадения осадков на основе

урана (IV). Другого влияния присутствия нитрата аммония на кинетику растворения уран-циркониевого сплава не установлено;

5) в процессе растворения необходимо поддерживать концентрацию пероксида водорода около 0,13 моль/дм<sup>3</sup>, дозируя в реакционный объём раствор пероксида водорода с концентрацией 1 моль/дм<sup>3</sup>.

При проведении экспериментов на стендовой установке был исследован состав выделяющейся при растворении газовой фазы. Результаты этих исследований приведены в табл. 5.

Растворы, получаемые растворением уран-циркониевого сплава методом Zirflex в присутствии пероксида водорода и содержащие несвязанные фторид-ионы, агрегативно стабильны только при температурах выше 90 °С. Введение азотной кислоты до концентрации минимум 0,5 моль/дм<sup>3</sup> позволяет хранить такие растворы в течение нескольких недель при комнатной температуре без выпадения осадков.

В отчёте [25] также изучено влияние пероксида водорода в составе нейтрального

фторидно-нитратного раствора на скорость коррозии конструкционных сталей аппаратов-растворителей. Результаты соответствующих экспериментов приведены в табл. 6.

Как видно из результатов экспериментов, приведённых в табл. 6, присутствие пероксида водорода даже в незначительных концентрациях позволяет многократно снизить скорость коррозии нержавеющей сталей. Однако для

Таблица 5

Состав газовой фазы, выделяющейся при растворении уран-циркониевого сплава в кипящем растворе, содержащем фторид и нитрат аммония, пероксид водорода с концентрациями 5,4; 0,33 и 0,13 моль/дм<sup>3</sup> соответственно

Компонент	Объёмная доля газа, %
Кислород	0,3
Водород	1,0
Азот	0,2
Аммиак	Остальное

Таблица 6

Влияние присутствия пероксида водорода в растворе при растворении уран-циркониевого сплава методом Zirflex при кипении на скорость коррозии основных марок нержавеющей сталей, применяемых в США, по данным отчёта [25]

Марка стали США	Маркировка ближайшего аналога стали в РФ или состав в массовых долях, %	Продолжительность контакта*, ч	Скорость коррозии в растворе 6 моль/дм <sup>3</sup> NH <sub>4</sub> F + 0,3 моль/дм <sup>3</sup> NH <sub>4</sub> NO <sub>3</sub> , мм/год	
			без H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	0,03 моль/дм <sup>3</sup> H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>
Hastelloy F	Cr – 20 %, Fe – 20 %, Mo – 6 %, Ni – остальное	3	2,19	0,69
		6	2,13	0,51
		9	1,50	0,42
309SNb	20X23H13 (309S)	3	2,61	0,21
		6	1,83	0,18
		9	1,38	0,24
Ni-O-Nel	Не установлена	3	1,80	0,24
		6	1,77	0,30
		9	1,44	0,51
Monel	НМЖМц 28-2,5-1,5	3	2,79	23,1
		6	4,53	27,3
		9	3,72	Нет данных

Примечание. \* Периодичность смены раствора – 3 ч.

сплава Monel наблюдается обратный эффект – скорость коррозии возрастает почти на порядок.

Согласно другому способу [26], разработанному для растворения ОЯТ реактора STR (топливная композиция представлена тройным сплавом, содержащим уран, цирконий и олово с массовыми долями 1 %, 97 % и 2 % соответственно), процесс проводят в три стадии.

На первой стадии топливо растворяют в чистом растворе фторида аммония с концентрацией 6 моль/дм<sup>3</sup>. При этом часть циркония переходит в раствор, а остальная его часть и весь уран выпадают в осадок в виде фторидов (уран в виде фторида урана (IV)). Далее осадок отфильтровывают и промывают раствором гидроксида аммония. При этом отмываются фторид-ионы, а уран и цирконий образуют гидроксиды, также нерастворимые. На завершающей стадии гидроксиды растворяют в азотной кислоте. Полученный раствор передают на переработку водными методами.

Такая организация позволяет существенно снизить поступление фторид-ионов на экстракционный передел.

В целом, оценивая результаты экспериментов по отработке параметров растворения циркониевых оболочек ТВЭЛ и сердечников из уран-циркониевых сплавов методом Zircflex, можно отметить высокую степень проработанности этого метода.

Анализ приведённых данных позволяет отметить следующие преимущества растворения в нейтральных фторидно-нитратных растворах:

- высокая скорость процесса,
- выделяющаяся газовая фаза взрывопожаробезопасна.

Но недостатки процесса все же преобладают:

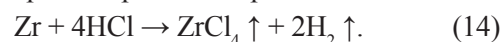
- процесс растворения требует очень точного соблюдения условий, что в промышленных условиях не всегда возможно,
- нейтральные фторидные растворы существенно не повышают скорость коррозии аппаратов-растворителей, но необходимость последующего введения азотной кислоты в растворы уран-циркониевых сплавов радикально повышает их коррозионную активность. Для её снижения в растворы вводят соли алюминия, что приводит к повышению засолённости рас-

творов и к затруднениям на стадии отверждения отходов.

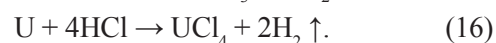
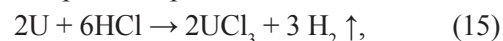
Такое количество весьма существенных недостатков технологии Zircflex могло воспрепятствовать промышленной реализации метода – в открытой печати отсутствуют сведения об этом.

Следующий способ получил название **Zircex** и был также разработан в США в 1950-х годах [27–30]. Это фактически метод разделения урана и циркония дистилляцией их хлоридов, температуры возгонки которых существенно различаются.

Процесс заключается в следующем. Обрабатываемый материал (топливо реакторов, используемых в авиации армии США, представляющее собой тройной сплав циркония, ниобия и урана с массовой долей последнего 6 %, 10 % и 84 %, топливо реакторов STR или цирконий) нагревают в токе особо чистого хлористого водорода при температурах от 350 до 400 °С. При этом происходит образование тетрахлорида циркония по реакции



Уран образует нелетучие при этих температурах хлориды по реакциям



Газовый поток, состоящий из тетрахлорида циркония и водорода, охлаждают, в результате чего тетрахлорид циркония десублимируется. Огарок из хлоридов урана, остатков циркония и продуктов деления растворяют в воде. Затем в этот раствор вводят азотную кислоту и отгоняют хлориды в виде паров соляной кислоты при кипении. Далее азотнокислый раствор передают на переработку водными методами.

Процесс хлорирования контролировали по изменению массы обрабатываемого материала или по количеству выделяемого водорода [27].

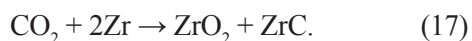
Скорость реакции хлорирования составляет 0,12 г/(см<sup>2</sup>·ч). Присутствие в реакционном объёме платиновой проволоки ускоряет реакцию примерно в 12 раз – до 1,41 г/(см<sup>2</sup>·ч) [27].

Процесс хлорирования весьма чувствителен к примесям. Например, присутствие кислорода или паров воды приводит к обра-

зованию твёрдого раствора диоксидов урана и циркония вместо соответствующих хлоридов. Этот твёрдый раствор не летуч и нерастворим в азотной кислоте, что приводит к потерям урана с осадками.

Между тем кислород всегда присутствует в системе. Одним из источников его поступления является сам исходный уран-циркониевый сплав, в котором кислород находится в растворённом виде. С другой стороны, массовая доля потерь урана из-за растворённого в сплаве кислорода незначительна и не превышает 0,006 %.

Примесь углекислого газа также отравляет процесс. Его реакция с цирконием в условиях хлорирования протекает по уравнению



При объёмной доле 20 % диоксида углерода в его смеси с хлористым водородом реакция прекращается вследствие экранирования обрабатываемого материала слоем диоксида циркония [27].

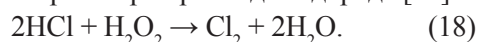
В работе [27] также отмечено, что примесь ниобия снижает скорость реакции хлорирования приблизительно на 75 %.

Разработан другой вариант Zircex-процесса [28], в котором хлорирование производится в два этапа – на первом этапе также хлористым водородом, но при 600 °С в течение 12 ч. При этом массовая доля циркония, переходящего в газовую фазу, достигает 97 %, а урана – от 1 до 10 %. Полученный газовый поток направляется в конденсатор, где охлаждается до 300 °С. При этом десублимируются хлориды урана, а хлорид циркония в виде газовой фракции передаётся в следующий холодильник, где происходит его осаждение при комнатной температуре. Массовая доля потерь урана за счёт его проскока на вторую стадию этого этапа – десублимацию – составляет не более 0,1 %.

На втором этапе производится хлорирование смесью азота и четырёххлористого углерода, доля последнего в смеси – 15 %. Продолжительность этапа – 1 ч при температуре от 500 °С до 600 °С. При этом возгоняются остаточные количества урана и циркония. Десублимация осуществляется в тех же аппаратах, что и на первом этапе, и при аналогичных условиях.

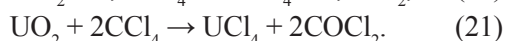
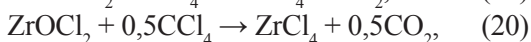
Массовая доля потерь урана за два этапа хлорирования за счёт его проскока на вторую стадию этого этапа – десублимацию – составляют также не более 0,1 %.

Хлориды урана, полученные на первой стадии десублимации, растворяют в воде, в которую затем вводят концентрированную азотную кислоту. Полученный раствор выдерживают 0,5 ч при температуре 60 °С, барботируя через него азот. При этом отгоняется основная масса хлора в виде хлористого водорода. Эффективность отгонки хлора может быть повышена введением в раствор пероксида водорода [29]



Далее раствор передают на переработку водными методами.

Преимущество обработки четырёххлористым углеродом – возможность хлорирования оксидов и оксихлоридов циркония, оксидов урана, что позволяет уменьшить потери урана с осадками. Процесс протекает по реакциям



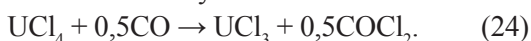
Трихлорид урана преобразуется в более летучий тетрахлорид



Фосген быстро разлагается, образуя монооксид углерода



Накопленный в первом конденсаторе тетрахлорид урана быстро превращается в трихлорид, что сопровождается сменой окраски с коричневой на зелёную



В отчёте [29] приведён способ конденсации паров хлорида циркония, заключающийся в подаче обрабатываемого газового потока в сосуд с кипящей водой над зеркалом раствора. При этом происходит образование хорошо растворимого в воде цирконил хлорида, переходящего в раствор в этом сосуде



Благодаря этому способу удаётся повысить концентрацию циркония в растворе-ловушке до 160 г/дм<sup>3</sup> и более.



Любопытно отметить, что в последние годы в США вернулись к исследованиям метода Zirsex для переработки уран-циркониевого ОЯТ. В частности, в программе [30] указано, что к концу 2019 г. должен быть закончен монтаж соответствующей установки, в начале 2020 г. должны начаться испытания на цирконии, затем к нему должны добавить алюминий, далее образцы необлучённого топлива, а в 2025 г. установка должна начать перерабатывать высокообогащённое облучённое топливо.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведённый обзор литературных источников показывает, что задача поиска новых способов перевода цирконийсодержащих материалов в азотнокислый раствор не теряет актуальности с 1950-х годов. Вначале исследования производились в широком спектре направлений:

- 1) методом выщелачивания урана из композитов, подвергшихся термическому окислению;
- 2) растворением в расплавах фторидов натрия и циркония;
- 3) электрохимическим растворением;
- 4) растворением в реагенте, содержащем плавиковую, азотную кислоты, нитрат алюминия и бихромат калия;
- 5) растворением в реагенте, содержащем плавиковую, серную или лимонную кислоты;
- 6) растворением в плавиковой кислоте;
- 7) дистилляцией хлоридов урана и циркония;
- 8) растворением в нейтральных растворах фторида и нитрата аммония;
- 9) растворением в азотнофториднокислых растворах.

В дальнейшем наибольшее развитие получили способы 6–9, некоторые из них получили промышленное освоение. Однако все эти методы не только весьма сложны для реализации (многостадийны, каждая стадия проводится в своем аппарате, требуют очень строгого соблюдения условий), но и растворы, получаемые по ним, проявляют высокую коррозионную активность. В итоге на сегодняшний день нет известного относительно простого способа, позволяющего растворять цирконийсодержащие материалы в аппаратах из распространённых и недорогих нержавеющих сталей.

Тем не менее в США на сегодняшний день продолжают исследования варианта высокотемпературной дистилляции галогенидов циркония с целью отделения этого металла в отдельный поток на начальных стадиях процесса переработки ОЯТ.

Таким образом, необходимо продолжать поиск более простых путей растворения цирконийсодержащих материалов, позволяющих получать растворы, не содержащие коррозионно-активных агентов. Эта задача продолжает быть актуальной и для действующего производства ФГУП "ПО "Маяк".

*Авторы выражают сердечную благодарность за помощь в подготовке материалов Литвиновой Марине Андреевне – специалисту группы коррозии ЦЗЛ ФГУП "ПО "Маяк".*

### ЛИТЕРАТУРА

1. R.H.J. Gercke, W.H. McVey. The Dissolution of Zirconium-Clad Uranium Target Elements: Report / Livermore Research Laboratory. – LRL-73(Rev.), 1953. – 17 p.
2. Стабровский А.И. Электрохимическое растворение твэлов в азотной кислоте // Атомная техника за рубежом. – 1970. – № 12. – С. 35–41.
3. Никитин С.А., Масленников А.Г., Ермолин В.С. Кинетика и материальный баланс процессов электрохимического растворения топливных композиций на основе уран-циркониевых сплавов, оболочек из нержавеющей стали и сплава Zr-Nb в азотной кислоте // Вопросы радиац. безопасности. – 2014. – № 1. – С. 16–25.
4. Патент № 2 613 352 RU. Способ переработки уран-циркониевых отходов / ФГУП "НИИ НПО "Луч"; исполн.: Н.Б. Алхимов, В.П. Исаков, Д.В. Марушкин [и др.]. – Дата приоритета 11.04.2016.
5. Пушленков М.Ф., Зильберман Б.Я. Переработка ядерного горючего // Атомная техника за рубежом. – 1966. – № 2. – С. 31–38.
6. Брукс Р. Исследования по переработке ядерного горючего (сокращ. перевод) // Атомная техника за рубежом. – 1965. – № 5. – С. 25–27.
7. Y. Marchant, J. Van Caeneghem. Citriflex-Decladding of Fuel Elements Clad with Zirconium or Zircalloy-2 by an Ammonium Fluoride-Citric Acid Solution. Final report of laboratory studies:

- Report / European Company for the Chemical Processing of Irradiated Fuels. – Mol (Belgium), 1965. – NP-15661; ETR-170.
8. T.A. Gens, G.A. West, L.M. Ferris. Demonstration of the Zirflex Process on Irradiated PWR Blanket Fuel: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL 59-8-142 issued 24.08.1959. – 19 p.
9. B.J. Newby. An Improved Aqueous Process Zirconium Alloy Nuclear Reactor Fuels. Part II. Continuous dissolution with 5M Hydrofluoric Acid: Report / Idaho Operations Office. – IDO-14619, 1963. – 15 p.
10. G.F. Offutt, B.R. Wheeler. First Zirconium Alloyed Fuel Reprocessing Campaign Using Soluble Nuclear Poison: Report / Idaho Nuclear Corporation. – IN-1091, 1968. – 61 p.
11. R.G. Wymer et al. Dissolution of Uranium-Zirconium Fuel Elements in Fused  $\text{NaF-ZrF}_4$ : Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-2183, 1957. – 26 p.
12. Патент № 2 379 776 RU. Способ переработки уран-циркониевых отходов / ФГУП "НИИ НПО "Луч"; исполн.: А.Д. Бухаркин, В.П. Денискин, Б.П. Колесников [и др.]. – Дата приоритета 15.12.2008.
13. Патент № 2 379 774 RU. Способ переработки отходов ядерного производства / ФГУП "НИИ НПО "Луч"; исполн.: А.Д. Бухаркин, В.П. Денискин, Б.П. Колесников [и др.]. – Дата приоритета 15.12.2008.
14. Шведов В.П., Седов В.М. Ядерная технология. – М.: Атомиздат, 1979. – 336 с.
15. Переработка ядерного горючего. – М.: Атомиздат, 1964. – 120 с.
16. E.M. Vander Wall, E.M. Whitener, D.L. Bauer. Dissolution of Zirconium and Zircalloy-2 in Nitric-Hydrofluoric Acid Mixtures at Reflux Temperatures: Report / Idaho Nuclear Corporation. – IDO-14497, 1960. – 29 p.
17. E.S. Occhipinti, J. Harding Owen et al. Dissolution Zirconium Alloy Fuels in 309SCb Stainless Steel Vessels: Report / Savannah River Laboratory. – DP-872, 1964. – 23 p.
18. H.D. Harmon. Penetrate-Leach Dissolution of Zirconium-Clad Uranium and Uranium Dioxide Fuels: Report / Savannah River Laboratory. – DP-1424, 1976. – 20 p.
19. J.H. Goode, M.G. Baillie, J.W. Ullmann. Demonstration of the Zirflex and Sulfex Decladding Processes and a Modified PUREX Solvent Extraction Process, Using Irradiated Zircalloy-2 and Stainless-Steel-Clad Urania Specimens: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-3404, 1963. – 77 p.
20. P.W. Smith. The Zirflex Process Terminal Development Report: Report / Hanford Atomic Products Operation. – HW-65979, 1960. – 51 p.
21. J.H. Goode, M.G. Baillie. Hot Cell Demonstration of the Zirflex and Sulfex Processes: Report # 1: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-TM-111, 1962. – 12 p.
22. J.H. Goode, M.G. Baillie. Hot Cell Demonstration of the Zirflex and Sulfex Processes: Report # 2: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-TM-130, 1962. – 23 p.
23. J.H. Goode, M.G. Baillie. Hot Cell Demonstration of the Zirflex and Sulfex Processes: Report # 3: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-TM-187, 1962. – 27 p.
24. ГОСТ 13819-68 Единая система защиты от коррозии и старения (ЕСЗКС). Металлы и сплавы. Десятибалльная шкала коррозионной стойкости (с Изменением №1), 1968.
25. T.A. Gens. Modified Zirflex Process for Dissolution of 1-10% U-Zr Alloy Fuels in Aqueous  $\text{NH}_4\text{F-NH}_4\text{NO}_3\text{-H}_2\text{O}_2$ : Laboratory Development: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-2905, 1960. – 24 p.
26. T.A. Gens, F.G. Baird. Modified Zirflex Process for Dissolution of Zirconium- and Niobium-Bearing Nuclear Fuels in Aqueous Fluoride Solutions: Laboratory Development: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-2713, 1959. – 30 p.
27. T.J. Carter, R.A. Stone. Zircex Kinetics and Uranium Losses Study: Memorandum / Massachusetts Institute of Technology. – EPS-X-328, 1957. – 23 p.
28. T.A. Gens, R.L. Jolley. New Laboratory Developments in the Zircex Process: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-2992, 1961. – 21 p.
29. T.A. Gens. Laboratory Development of a Combined Chloride Volatility Aqueous Processing Method for Uranium-Zirconium Fuels: Report / Oak Ridge National Laboratory. – ORNL-TM-645, 1963. – 29 p.
30. 2019 NE-4 Nuclear Fuel Cycle and Supply Chain (NFCSC): Report / U.S. Department of Energy; compiled: R. Nova, B. Hong, K. Stokes. – INL/EXT-19-52567, January 2020. – 66 p.

УДК 621.039.7

© 2021

## ПОЛУЧЕНИЕ КЕРАМИЧЕСКИХ УРАН-ОКСИДНЫХ ТОПЛИВНЫХ КОМПОЗИЦИЙ ПОД ВОЗДЕЙСТВИЕМ СВЧ ИЗЛУЧЕНИЯ

*Ю.М. Куляко, Т.И. Трофимов, С.А. Перевалов, К.С. Пилюшенко,  
С.Е. Винокуров, Б.Ф. Мясоедов*

*Россия, г. Москва, Институт геохимии и аналитической  
химии им. В.И. Вернадского РАН*

Исследованы возможности использования СВЧ излучения для приготовления порошка диоксида урана как основы ядерного топлива из его нитратных растворов и из порошка триоксида урана, в том числе в присутствии органических восстановителей (карбогидразид, ацетгидроксамовая и аминокислоты), а также в восстановительной, инертной атмосфере и на воздухе. Изучены гранулометрический состав, морфология частиц и физико-химические и технологические свойства полученных образцов порошка диоксида урана. Показано, что насыпная плотность, удельная поверхность и массовая доля влаги полученного порошка диоксида урана соответствуют нормативным требованиям. Изучено влияние условий прессования и спекания порошка диоксида урана под действием СВЧ излучения на качество полученных таблеток. Показано, что при спекании таблеток из спрессованного диоксида урана под действием СВЧ излучения мощностью 2,1 кВт при 1650 °С в течение 2 ч приготовлены керамические таблетки с плотностью около 10,40 г/см<sup>3</sup> и открытой пористостью около 0,25 об. %, что соответствует требованиям к топливным таблеткам.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ДИОКСИД УРАНА, ТРИОКСИД УРАНА, НИТРАТ УРАНИЛА, ДЕНИТРАЦИЯ, СВЧ ИЗЛУЧЕНИЕ, ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО, СПЕКАНИЕ, ТОПЛИВНЫЕ ТАБЛЕТКИ

В настоящее время конечным продуктом переработки урановых руд и отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) являются растворы нитрата уранила, из которых U осаждают в виде аммонийуранилтрикарбоната, диураната аммония и ряда других соединений (прекурсоров). Эти прекурсоры прокаливают в печах электрического сопротивления с получением порошка UO<sub>2</sub> керамического качества. Затем порошок прессуют в соответствующих формах и спекают в конвекционных электропечах в керамические топливные таблетки [1, 2]. Указанные процедуры обладают рядом существенных недостатков, главными из которых являются многостадийность процессов осаждения, образование большого количества жидких радиоактивных отходов (ЖРО), содержащих до десятков мг/л U и 100 мг/л нитрат ионов, а также длительность процессов прокаливания и спекания в печах сопротивления, требующих большого энергопотребления.

При этом в последнее время всё большее значение приобретает использование сверхвысокочастотного (СВЧ) излучения при химическом синтезе, катализе, спекании керамики, пробоподготовке и других процессах. Основными преимуществами СВЧ излучения по сравнению с традиционным конвективным нагревом являются быстрота, селективность, объёмность и однородность нагревания, а также значительно меньшее энергопотребление. Ранее в нашем обзоре [3] были описаны предложенные методы при использовании СВЧ излучения, в том числе получения оксидов урана из его соединений, переработки некондиционных керамических таблеток оксидного уранового топлива и изготовления порошков оксидов актинидов термической денитрацией растворов нитратов U, Np, Pu в присутствии гидразингидрата, которые могут быть использованы для фабрикации ядерного топлива.

Настоящая статья обобщает результаты развития наших исследований и разработок для решения ряда радиохимических задач с целью создания научных основ новой технологии фабрики ядерного топлива при использовании СВЧ излучения.

# ИЗУЧЕНИЕ ПОВЕДЕНИЯ УРАНА ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ СВЧ ИЗЛУЧЕНИЯ В АЗОТНОКИСЛЫХ РАСТВОРАХ, СОДЕРЖАЩИХ ОРГАНИЧЕСКИЕ ВОССТАНОВИТЕЛИ

Известно [4], что на завершающей стадии экстракционной переработки ОЯТ реакторной установки БРЕСТ-300 будут получать азотно-кислые растворы-реэкстракты, в которых наряду с ураном будут также присутствовать органические восстановители: ацетгидроксамовая кислота (АГК)  $\text{CH}_3\text{CONHON}$  с нитратом гидразина (НГ)  $\text{N}_2\text{H}_5\text{NO}_3$  или карбогидразид (КГ)  $\text{OC}(\text{NHNH}_2)_2$ , с аминокислотой (или глицин)  $\text{NH}_2\text{CH}_2\text{COOH}$ . Эти растворы будут использованы в последующих денитрационных термических операциях упаривания, сушки концентрата, разложения при прокаливании в восстановительной атмосфере для получения порошка  $\text{UO}_2$ , применяемого для последующего производства топливных таблеток. В этой связи представлялось важным исследовать

возможность использования СВЧ излучения для термической денитрации азотнокислых растворов урана с получением кондиционного порошка  $\text{UO}_2$ . В исследованиях использовали модельные азотнокислые растворы урана, в том числе содержащие указанные органические восстановители (далее – растворы РЭ-1 и РЭ-2), составы которых приведены в табл. 1. В табл. 2 приведены некоторые физико-химические характеристики органических восстановителей, присутствующих в использованных растворах.

Эксперименты выполняли на сконструированной нами установке на основе СВЧ печи Samsung (MW73VR, мощность 800 Вт, частота 2,45 ГГц), схема которой приведена на рис. 1 [5]. Кварцевую колбу объемом 500 мл с 250 мл раствора уранилнитрата (ВТУ-РУ 966-53) помещали в камеру СВЧ печи на термозащитную подставку из легковесного волокнистого керамокомпозита (ЛВБК, изготовитель – ГНЦ РФ "ГНИИХТЭОС"). В горловину колбы вставляли шлифованную тефлоновую пробку с двумя отверстиями диаметром 3 и 6 мм, в которые вставляли тефлоновую и кварцевую трубки соответствующего диаметра. Через отверстие в верхней части камеры диаметром 15 мм тефлоновую трубку соединяли с газовым баллоном для подачи восстановительной газовой смеси (ВГС) аргона с 10 об. % водорода, а кварцевую – с предварительно подготовлен-

Таблица 1

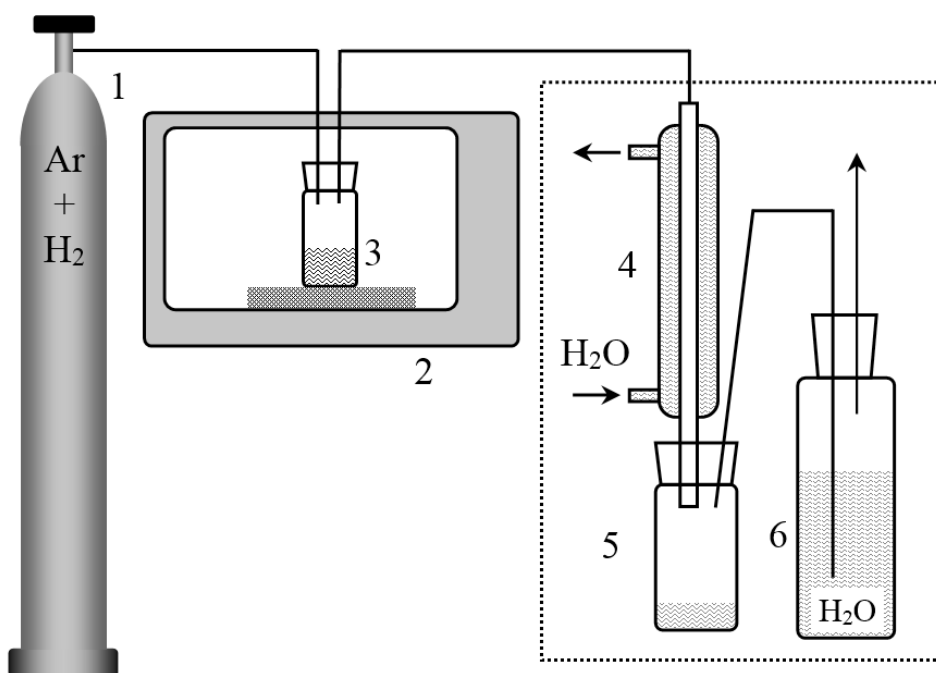
Составы модельных азотнокислых растворов

Раствор	$[\text{HNO}_3]$ , моль/л	Содержание компонентов, г/л				
		U	КГ	АГК	Глицин	НГ
РЭ-1	0,60	50	–	15	–	40
РЭ-2	0,14	48	36	–	36	–

Таблица 2

Использованные в исследованиях соединения и их некоторые физико-химические характеристики

Название и химическая формула	Молярная масса	Тпл., °С	Ткип., °С	Тразл., °С
Карбогидразид (хч)	90,08	154	–	154
Ацетогидроксамовая кислота (хч)	75,07	85–90	231	250
Аминокислота (глицин) (хч)	75,07	233	–	290
Триоксид урана (чда)	304,03	800	–	–



1 – баллон с газовой смесью Ar и 10 об. %  $H_2$ ; 2 – модернизированная СВЧ печь (Samsung, 800 Вт, 2450 МГц); 3 – кварцевая колба с урансодержащим раствором; 4 – холодильник; 5 – сборник конденсата; 6 – ловушка-гидрозатвор

Рис. 1. Схема установки для денитрации азотнокислых растворов урана при воздействии СВЧ излучения

ной системой сбора конденсата и улавливания окислов азота.

В результате проведенных исследований, детально описанных в нашей работе [5], установлено, что при воздействии СВЧ излучения на азотнокислые растворы происходит интенсивное выделение оксидов азота, паров воды и образование соединения урана в виде темно-оранжевой массы как на воздухе, так и в атмосфере ВГС. В спектре светопоглощения раствора (спектрофотометр Unicam UV-300, Unicam Instruments, Великобритания) полученного соединения в смеси 4 моль/л  $HCl$  с 0,1 моль/л  $HF$  обнаружено только поглощение  $U(VI)$  с максимумом при 420 нм. По данным гравиметрического (весы неавтоматического действия HR-250AZG, A&D Co, LTD, Япония) и радиометрического (альфа-спектрометр Alpha Analyst, Canberra, США) анализов подтверждено, что полученное соединение представляет собой  $UO_3$ . Дальнейшее воздействие

СВЧ излучения не приводит к изменениям полученного порошка  $UO_3$ , так как триоксид не способен разогреваться до высоких температур при поглощении энергии СВЧ излучения.

В то же время показано, что при СВЧ воздействии на растворы РЭ-1 и РЭ-2, содержащие органические восстановители, в растворах образуется  $U(IV)$  за счёт частичного восстановления  $U(VI)$  (рис. 2). При этом порошки оксидов урана, полученные после удаления азотнокислого раствора и окислов азота под воздействием СВЧ излучения, представляли собой смешанные оксиды урана  $UO_x$ , в которых содержание  $U(VI)$  составляло от 73 до 84 %, а  $U(IV)$  – от 27 до 16 % соответственно. Дальнейшее термическое воздействие СВЧ излучения мощностью 180 Вт на  $UO_x$  приводило к разогреву порошков до  $\sim 700^\circ C$  и в атмосфере ВГС к количественному получению порошка  $UO_2$ , что подтверждено как спектрофотометрически (рис. 3), так и результатами исследования



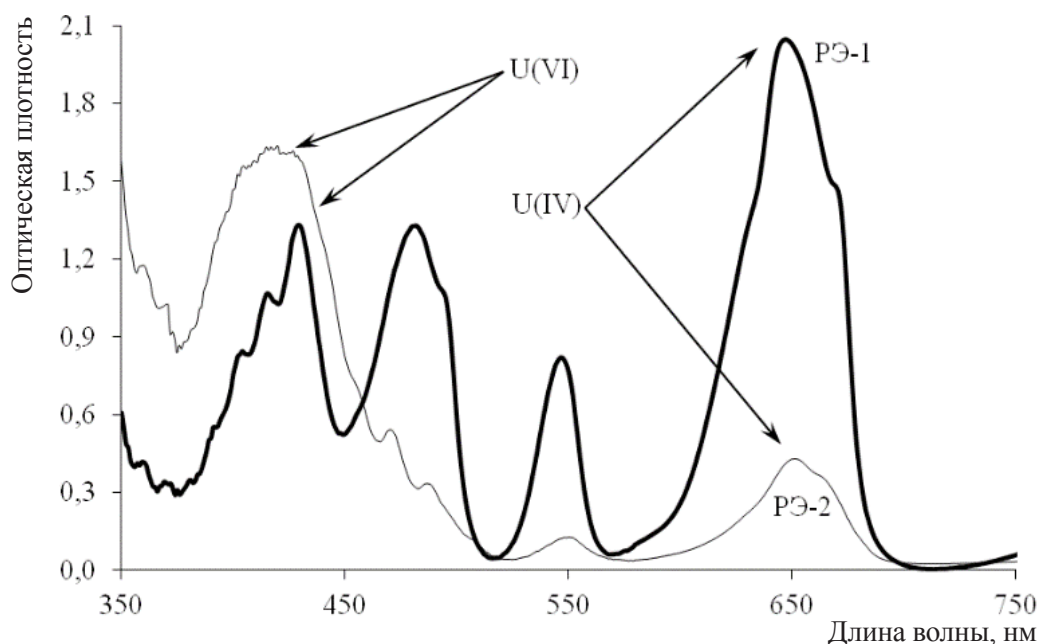


Рис. 2. Спектры светопоглощения концентрированных растворов РЭ-1 и РЭ-2, полученных в процессе их упаривания под действием СВЧ излучения (степень концентрирования ~15)

порошка методом рентгеновской дифрактометрии (ULTIMA-IV, Rigaku, Япония) (рис. 4). Так, наблюдаемые максимумы интенсивностей на рис. 4 соответствуют положениям рефлексов для  $UO_2$  из базы данных [6].

Основные физико-химические характеристики порошков диоксида урана, полученных из растворов РЭ-1 и РЭ-2 при их термохимической денитрации с использованием СВЧ излучения, приведены в сводной табл. 3 (столбец 2). Массовую долю урана и, соответственно, полноту его восстановления в полученных образцах порошка определяли комбинацией методов спектрофотометрии, радиометрии, термогравиметрического (ТГ) анализа и дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК) (синхронный термоанализатор STA 409 PC Luxx, Netzsch, Германия), а также порошковой рентгеновской дифрактометрии. Гранулометрический состав порошков исследовали при использовании виброситового анализатора Hsiangtai LS-300 (Тайвань) при частоте вращения двигателя установки 3000 об/мин в течение 15 мин. Удельную поверхность порошка определяли

при использовании установки Quadrasorb SI/Kr; насыпную плотность с утряской – в соответствии с методикой [7] на устройстве Autotap. Содержание влаги в порошке также оценивали по данным ТГ/ДСК с масс-спектрометрией газовой фазы.

Из табл. 3 (столбец 2) видно, что значения насыпной плотности с утряской и удельной поверхности полученных порошков соответствуют нормативным требованиям [8] (табл. 2, столбец 5), предъявляемым к порошку  $UO_2$  керамического качества, используемого при промышленном изготовлении оксидного ядерного топлива для АЭС. Таким образом, установлено, что органические восстановители при денитрации растворов РЭ-1 и РЭ-2 инициируют восстановление  $U(VI)$  до оксида  $UO_x$ , близкого по составу к  $U_3O_8$ , который, в отличие от  $UO_3$ , способен интенсивно разогреваться при поглощении энергии СВЧ излучения и далее в атмосфере ВГС превращаться в диоксид урана, пригодный для последующей фабрикаци топливных таблеток. При этом использование СВЧ излучения позволяет получать  $UO_2$  непосредственно из его азотнокислых растворов в

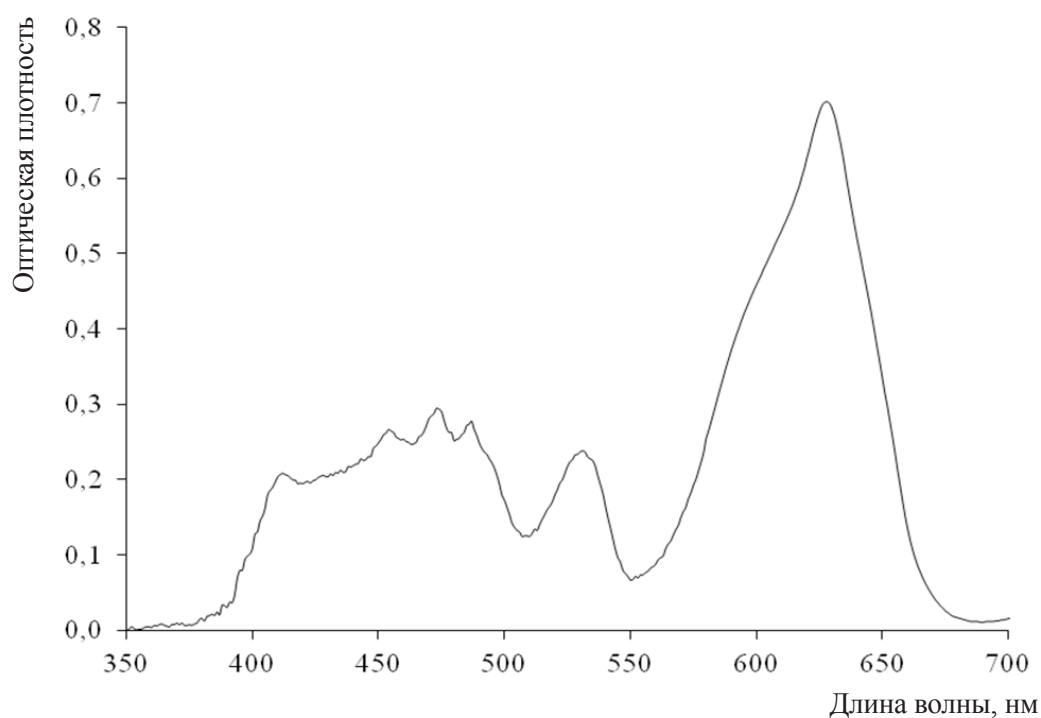


Рис. 3. Спектр светопоглощения растворённого в смеси 4 моль/л HCl и 0,1 моль/л HF диоксида урана, полученного при термохимической денитрации раствора РЭ-1 под воздействием СВЧ излучения в восстановительной атмосфере

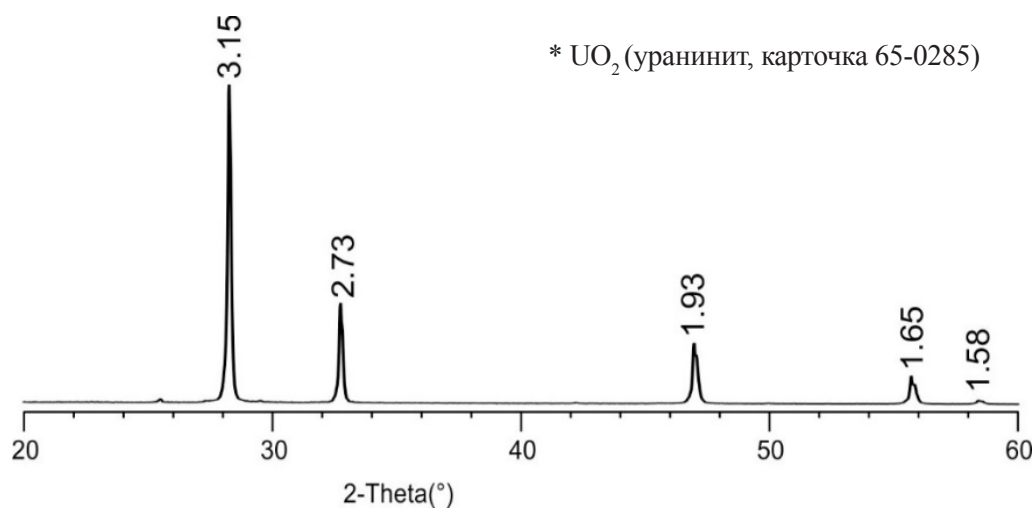


Рис. 4. Дифрактограмма порошка  $\text{UO}_2$ , полученного из азотнокислого раствора, содержащего органические восстановители, под действием СВЧ излучения

Таблица 3

Характеристики порошков  $UO_2$ , полученных из азотнокислых растворов урана при их термохимической денитрации с использованием СВЧ излучения в атмосфере ВГС (н.о. – не определяли)

Характеристики приготовленных порошков $UO_2$	Порошки $UO_2$ , полученные в различных условиях при воздействии СВЧ излучения				Нормативные требования ТУ 95414–2005 [8]		
	Из азотнокислых растворов РЭ-1 и РЭ-2 в атмосфере ВГС	Из порошка $UO_3$ в присутствии $KI$	Из порошка $UO_3$ в присутствии АГК	Из раствора уранилнитрата с концентрацией 400 г/ по урану в атмосфере ВГС			
1	2	3	4	5	6		
Гранулометрический состав, мкм (доля фракции в образце, %)	от 25 до 400 – не менее 99,6 %	$x > 400$	(1,4)	$x > 400$	(2,1)	$x > 400$	(0,3)
		$125 < x < 400$	(65,8)	$125 < x < 400$	(60,3)	$125 < x < 400$	(46,5)
		$50 < x < 125$	(17,8)	$50 < x < 125$	(19,4)	$50 < x < 125$	(28,1)
		$25 < x < 50$	(12,0)	$25 < x < 50$	(15,9)	$25 < x < 50$	(25,0)
		$x < 25$	(3,1)	$x < 25$	(2,3)	$x < 25$	(0,1)
Массовая доля урана в порошке, %	не менее 88,1	88,0	88,0	88,1	не менее 87,4		
Насыпная плотность с утряской, г/см <sup>3</sup>	2,35–2,43	2,6	2,7	2,4	не менее 1,8		
Удельная поверхность, м <sup>2</sup> /г	2,15–2,40	3,2	2,1	2,7	2,0–3,5		
Массовая доля влаги, %	н.о.	не более 0,1	не более 0,1	~0,1	не более 0,4		

одностадийном процессе, исключаящем образование ЖРО, требующих специального обращения с ними.

### ПОЛУЧЕНИЕ ПОРОШКА ДИОКСИДА УРАНА ИЗ ЕГО ТРИОКСИДА В ПРИСУТСТВИИ ОРГАНИЧЕСКИХ ВОССТАНОВИТЕЛЕЙ ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ СВЧ ИЗЛУЧЕНИЯ

Учитывая то, что  $\text{UO}_3$ , наряду с гексагидратом уранилнитрата, является целевым продуктом переработки урановых руд, представляло интерес исследовать возможности получения  $\text{UO}_2$  непосредственно из  $\text{UO}_3$  в присутствии вышеуказанных органических реагентов: КГ, АГК и глицина (табл. 2) [9]. Исследования выполняли на СВЧ установке Discover (США) в кварцевом реакторе. Условия контроля полноты восстановления урана и определения физико-химических свойств полученных порошков аналогичны указанным в предыдущем разделе настоящей статьи.

Для определения механизма превращения  $\text{UO}_3$  в  $\text{UO}_2$  было важным получить информацию о поведении органических реагентов при воздействии на них СВЧ излучения. Из зависимости на рис. 5 (кривая 1) видно, что при воздействии СВЧ излучения начинается медленный разогрев КГ и через 90 мин температура КГ достигает  $140^\circ\text{C}$ . Затем следует резкий рост температуры до  $\sim 300^\circ\text{C}$ , сопровождающийся интенсивным кратковременным выделением газа, после чего температура постепенно снижается. Очевидно, что выделение газа указывает на процесс разложения КГ, происходящий при превышении температуры его плавления  $154^\circ\text{C}$  (табл. 2), а резкий подъем температуры свидетельствует об экзотермическом характере этого процесса. В соответствии с работой [10] механизм разложения КГ может быть представлен в виде реакций (1)–(3). Так, при нагревании КГ взаимодействует с кислородом воздуха по реакции (1) и затем с образовавшейся в результате этой реакции водой с образованием гидразина и  $\text{CO}_2$  по реакции (2). Полученный в результате реакции (2) гидразин (жидкость с температурой кипения  $114^\circ\text{C}$ ) способствует удалению кислорода воздуха в соответствии с

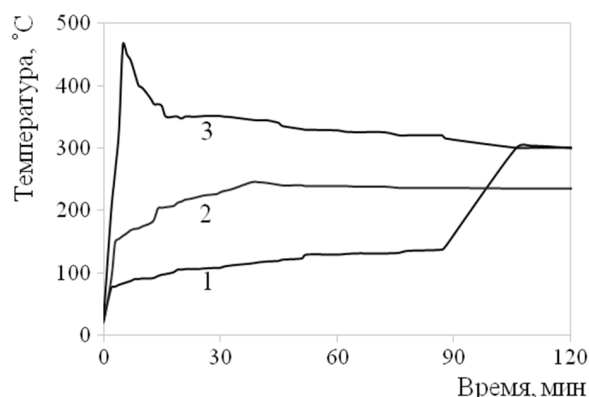
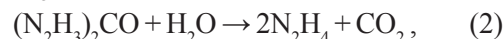


Рис. 5. Зависимость температуры КГ (кривая 1), АГК (кривая 2) и глицина (кривая 3) от времени воздействия СВЧ излучения

Условия: навески реагентов  $\sim 2$  г; мощность СВЧ излучения  $300\text{ Вт}$

реакцией (3), что обеспечивает восстановительную атмосферу в реакторе СВЧ установки.



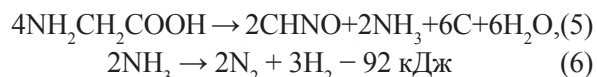
Установлено, что порошок АГК (рис. 5, кривая 2) поглощает СВЧ излучение более интенсивно, чем КГ. При этом уже через 1 мин масса АГК разогревается до температуры его плавления ( $90^\circ\text{C}$ ) и затем через 40 мин – до температуры разложения ( $250^\circ\text{C}$ ). Разложение АГК, как и КГ, сопровождается кратковременным газовыделением и, очевидно, происходит в соответствии с реакцией (4):



Образующиеся СО и метилгидроксиламин  $\text{CH}_3\text{NHOH}$  (температуры плавления и кипения  $42$  и  $115^\circ\text{C}$  соответственно), переходящие в газовую фазу, вытесняют воздух из объема реактора, обеспечивая тем самым восстановительную атмосферу.

Глицин наиболее интенсивно поглощает СВЧ излучение в сравнении с КГ и АГК и в течение 3 мин разогревается до  $262^\circ\text{C}$  (рис. 5, кривая 3), что выше температуры его плавления. Затем глицин разлагается, вероятно, в соответствии с реакцией (5) с выделением тепла, так

что уже через 5 мин достигается температура 466 °С.



При этом образуются изоциановая кислота (CHNO, температура кипения 23 °С), аммиак, технический углерод (сажа) и вода. Возможно, что под действием СВЧ излучения NH<sub>3</sub> также разлагается по эндотермической реакции (6), в результате которой за счёт H<sub>2</sub> создаётся восстановительная атмосфера, что будет обеспечивать восстановление UO<sub>3</sub> до UO<sub>2</sub>. При этом следует отметить, что негативным моментом при использовании глицина является образование сажи (см. реакцию (5)), что приведёт к загрязнению порошка UO<sub>2</sub> углеродом, поэтому использование глицина в технологических схемах нецелесообразно.

Исследовали также поведение UO<sub>3</sub> и его смесей с КГ и АГК при воздействии СВЧ излучения. Показано, что порошок UO<sub>3</sub> слабо поглощает СВЧ излучение (рис. 6, кривая 1). При подаче СВЧ излучения UO<sub>3</sub> начинает медленно разогреваться, достигая за 65 мин максимальной температуры 162 °С, а затем температура порошка сохраняется практически постоянной. При этом отмечено, что масса полученного оксида также не изменяется, что указывает на отсутствие восстановления урана.

Данные о влиянии экспериментальных условий на полноту восстановления урана при

воздействии СВЧ излучения на UO<sub>3</sub> в присутствии КГ и АГК приведены в табл. 4. В целом, при равных мольных отношениях UO<sub>3</sub> к реагенту влияние КГ и АГК на восстановление урана в полученном при воздействии СВЧ излучения продукте аналогично. Показано, что в случае воздействия СВЧ излучения на смеси UO<sub>3</sub> и КГ или АГК при их мольном отношении 1:1 содержание U(IV) составляет около

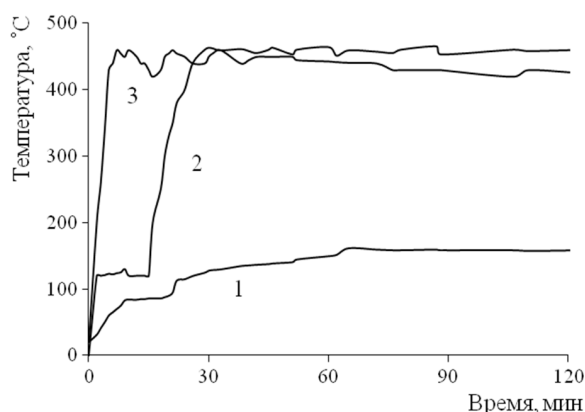


Рис. 6. Зависимость температуры UO<sub>3</sub> (кривая 1), а также смесей UO<sub>3</sub> с КГ (кривая 2) и UO<sub>3</sub> с АГК (кривая 3) от времени воздействия СВЧ излучения  
Условия: масса UO<sub>3</sub> и смесей с реагентами ~2 г; мольное соотношение UO<sub>3</sub> : реагент = 1 : 1,5; мощность СВЧ излучения 300 Вт

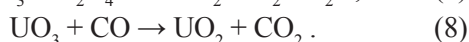
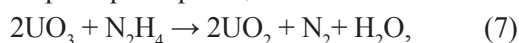
Таблица 4

Влияние экспериментальных условий на полноту восстановления урана при воздействии СВЧ излучения на порошок UO<sub>3</sub> в присутствии органических реагентов

Реагент	Мольное отношение уран : реагент	Исходная атмосфера в реакторе	Дополнительная продувка реактора воздухом	Содержание U(IV) в полученном оксиде, %	Полученный оксид урана
КГ	1 : 1	Воздух	—	34±2	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>
	1 : 1,5		—	98±1	UO <sub>2</sub>
	1 : 1,5		да	35±2	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>
	10 : 1		—	33±2	
АГК	1 : 1	Воздух	—	33±2	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>
	1 : 1,5		—	98±1	UO <sub>2</sub>
	1 : 1,5		да	33±2	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>
	10 : 1		—	30±2	



33–34 %, что соответствует его содержанию в  $U_3O_8$  (табл. 4). Очевидно, что гидразин и CO, полученные из КГ и АГК по реакциям (2) и (4) соответственно, частично восстанавливают  $UO_3$  до  $UO_2$  по реакциям (7) и (8) соответственно. При этом полученный  $UO_2$  поглощает энергию СВЧ излучения и быстро разогревает реакционную массу до температуры, при которой начинается отщепление кислорода от  $UO_3$  с образованием  $U_3O_8$ , который также поглощает энергию СВЧ излучения, вызывая дополнительный разогрев в реакционной массе.



В то же время  $UO_3$  в смеси с КГ или АГК, взятых в 1,5 мольном избытке относительно  $UO_3$ , практически количественно переходит в  $UO_2$  (табл. 4). Это обусловлено тем, что образующиеся при разложении КГ и АГК газы ( $N_2$  и  $CO_2$ , реакции (2) и (3) или  $CH_3NHOH + CO$ , реакция (4)), объём которых значительно больше внутреннего объёма реактора, вытесняют находящийся в реакторе воздух. Таким образом, как было отмечено в предыдущем разделе, в реакторе создаётся восстановительная атмосфера, что приводит к получению  $UO_2$ .

Отмечено, что температурно-временные зависимости при воздействии на смеси  $UO_3$  в смеси с КГ или АГК отличаются (рис. 6, кривые 2 и 3 соответственно). Так, под действием СВЧ излучения смесь  $UO_3$  с КГ через 1 мин после включения магнетрона СВЧ установки нагревается до 120 °С, однако в течение следующих 15 мин температура не растёт (рис. 6, кривая 2). Затем, видимо, вследствие частичного восстановления урана полученный  $UO_2$  начинает поглощать энергию излучения, что приводит к подъёму температуры смеси до ~460 °С через 15 мин, которая поддерживается в интервале 460 ± 8 °С в течение последующих 100 мин.

В случае смеси  $UO_3$  с АГК подъём температуры происходит значительно быстрее (рис. 6, кривая 3). Так, через 3 мин температура в смеси достигает 260 °С, что приводит к разложению АГК с кратковременным выделением газа, не более 2 мин. Температура смеси около 460 °С достигается за 7 мин, а далее в течение 2 ч она постепенно снижается до ~420 °С. Очевидно, что в случае увеличения мощности

СВЧ излучения температура полученного порошка  $UO_2$  будет повышаться, что приведёт к его спеканию.

В то же время отмечено, что, несмотря на аналогичный характер температурно-временных зависимостей (рис. 6, кривые 2 и 3), из  $UO_3$  образуется  $U_3O_8$  как при том же мольном отношении 1:1,5 с КГ и АГК, но с дополнительной продувкой реактора воздухом и, соответственно, в полученной окислительной атмосфере, так и при избыточном мольном отношении  $UO_3$  к реагентам 10:1 (табл. 4). В последнем случае количества образующихся гидразина и CO недостаточно для полного восстановления U(VI) до U(IV), однако позволяет разогревать смеси до температуры не менее 400 °С, при которой получается  $U_3O_8$  за счёт отщепления кислорода от исходного  $UO_3$ . В этом случае при последующей подаче ВГС под действием СВЧ излучения из  $U_3O_8$  будет получен целевой порошок  $UO_2$ .

Данные о гранулометрическом составе и физических характеристиках порошков  $UO_2$ , полученных из  $UO_3$  в присутствии КГ и АГК под воздействием СВЧ излучения, приведены в табл. 3, столбцы 3 и 4 соответственно. Видно, что распределение частиц порошков по размерам фракций практически идентично: около двух третей по массе частиц имеет размеры в диапазоне 0,125–0,4 мм. При этом доля фракции с размером более 0,4 мм, как и фракции менее 0,026 мм, обращение с которой может привести к пылению порошка, незначительны и составляют не более 1–3 %. В целом, гранулометрический состав полученных порошков соответствует распределению частиц порошка для фабрикаций топливных таблеток [1]. Насыпная плотность с утряской и полная удельная поверхность полученных порошков  $UO_2$  составляют 2,6–2,7 г/см<sup>3</sup> и 2,1–3,2 м<sup>2</sup>/г соответственно, а содержание влаги в них – не более 0,1 масс. %. Тем самым показано соответствие данных физических характеристик исследованных порошков нормативным требованиям [8].

Отметим, что особенность применения СВЧ излучения заключается в возможности быстрого разогрева смесей порошка  $UO_3$  с указанными органическими реагентами до температуры их разложения с образованием в объёме реактора инертной или восстановительной газовой атмосферы. Это позволяет

осуществить процесс восстановления  $\text{UO}_3$  до  $\text{UO}_2$  даже в условиях отсутствия подвода ВГС в одном реакционном сосуде и при температуре, не превышающей  $500^\circ\text{C}$ , и в итоге получить порошок  $\text{UO}_2$ , соответствующий требованиям [8] для последующего изготовления топливных таблеток.

### ПРИМЕНЕНИЕ СВЧ ИЗЛУЧЕНИЯ ДЛЯ СПЕКАНИЯ ТАБЛЕТОК $\text{UO}_2$

Порошок  $\text{UO}_2$  для последующего прессования и спекания топливных таблеток готовили путём воздействия СВЧ излучением на раствор уранилнитрата, содержащий 400 г/л урана. Раствор упаривали при мощности СВЧ излучения 800 Вт в потоке ВГС до образования губчатого кека чёрного цвета. СВЧ печь выключали, а колбу с кеком вынимали из печи, встряхивали для отделения частиц от стенок и измельчали порошок в колбе вручную шпателем. Колбу с полученным порошком снова помещали в СВЧ печь, соединяли с системами подачи ВГС и сбора конденсата, включали магнетрон на мощности 180 Вт и в токе используемой ВГС с расходом 1 л/мин нагревали порошок в течение 4 ч. После этого магнетрон выключали и вынимали колбу,

а полученный порошок помещали в виброситовой анализатор на сито с диаметром 20 см и размером ячеек не более 0,4 мм. На порошок в сито помещали протир – диск из дюралюминия диаметром 19,8 см и толщиной 2 мм для измельчения полученных частиц порошка с размером более 0,4 мм. Установлено, что характеристики полученного порошка  $\text{UO}_2$  (табл. 2, столбец 5) соответствовали требованиям [8]. Так, по данным методов спектрофотометрии и ТГ/ДСК (рис. 7) показано, что в результате СВЧ дениитрации азотнокислого раствора уранилнитрата получен порошок  $\text{UO}_2$ , в котором уран количественно восстановлен до состояния окисления (IV). Дифрактограмма данного порошка  $\text{UO}_2$  аналогична приведённой на рис. 4. Размеры частиц порошка находятся преимущественно в диапазоне 25–400 мкм. Насыпная плотность с утряской полученного порошка и его удельная поверхность соответствуют требованиям [8]. Показано, что содержание остаточной влаги в порошке не превышает 0,1 масс. % (рис. 7). Так, из рис. 7 видно, что в масс-спектре газовой фазы отсутствует выраженный характерный пик воды ( $M=18$  г/моль).

Прессование "сырых" таблеток из полученного порошка  $\text{UO}_2$  выполняли в соответствии с

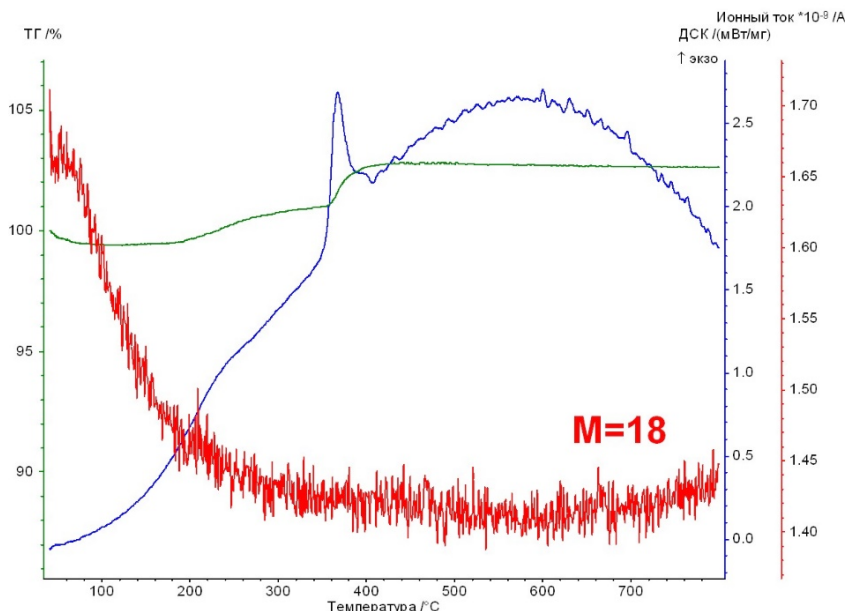


Рис. 7. Данные ТГ/ДСК анализа при нагревании на воздухе полученного порошка диоксида урана

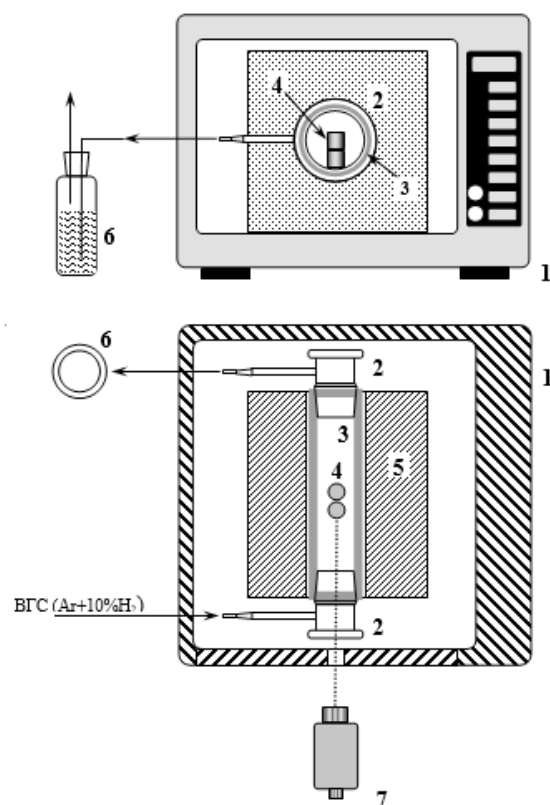
рекомендациями в работе [11]. Таблетки получали прессованием на лабораторном гидравлическом прессе (модель ППР, LAB TOOLS) с диаметром матрицы и пуансона 10 мм; поверхность пресс-формы смазывали глицерином. При прессовании таблеток варьировали давление (от 2 до 6 тс/см<sup>2</sup>), способ прессования (одностороннее или двухстороннее), массу порошка на таблетку, а также наличие пластификатора (водная суспензия 8,5 % поливинилового спирта и 0,5 масс. % глицерина). Плотность полученных спрессованных таблеток рассчитывали из их массы и геометрических размеров. Перед последующим спеканием полученные таблетки сушили при 90 °С до остаточной влаги не более 1 масс. %.

Схема установки для СВЧ спекания спрессованных таблеток приведена на рис. 8. Для спекания использовали СВЧ печь КОСАТЕQ MWO2100/34 E (Южная Корея) мощностью до 2,1 кВт и частотой 2,45 ГГц с двумя диссекторами для равномерного распределения микроволн в камере печи. Таблетки устанавливали в герметичный реактор, размещённый в камере печи и состоящий из алундовой трубки длиной 400 мм, диаметром 32 мм и толщиной стенки 2 мм, в которую с обоих концов вставлялись пришлифованные к её внутренней поверхности кварцевые пробки с патрубками для подачи в реактор и отвода ВГС через ловушку в атмосферу, что исключало попадание в реактор атмосферного воздуха. Реактор размещался в термозащитном корпусе из ЛВВК.

Спекание таблеток проводили, подавая напряжение на магнетрон СВЧ печи через стабилизатор напряжения и ЛАТР, который позволял регулировать мощность магнетрона и управлять температурным режимом при спекании таблеток. Таблетки нагревали до 1650±20 °С со скоростью около 9 °С/мин, выдерживали при этой температуре в течение до 4 ч, а затем охлаждали до ~800 °С со скоростью около 8 °С/мин с последующим остыванием до комнатной температуры естественным образом в атмосфере ВГС. Температуру спекаемых таблеток контролировали через прозрачную кварцевую пробку визуальным пирометром "Проминь". Плотность полученных спечённых таблеток рассчитывали методом гидростатического взвешивания на аналитических весах HR-

250AZG с приспособлением Sartorius YDK-01.

Для выбора оптимального режима спекания изучали зависимость плотности получаемых спечённых таблеток от условий прессования и спекания; в исследованиях использовали по две спрессованные таблетки диоксида урана. В результате установили, что достижение требуемой плотности спечённых таблеток (рис. 9) около 10,40 г/см<sup>3</sup> (95 % от теоретической плот-



1 – СВЧ печь; 2 – пришлифованная кварцевая пробка с патрубком для подачи или отвода ВГС; 3 – алундовая трубка со шлифами 4 – таблетки из UO<sub>2</sub>; 5 – термозащитный кожух из ЛВВК; 6 – ловушка-гидрозатвор с водой; 7 – визуальный пирометр

Рис. 8. Схема установки для спекания таблеток UO<sub>2</sub> при воздействии СВЧ излучения (вверху и внизу – виды сбоку и сверху соответственно)

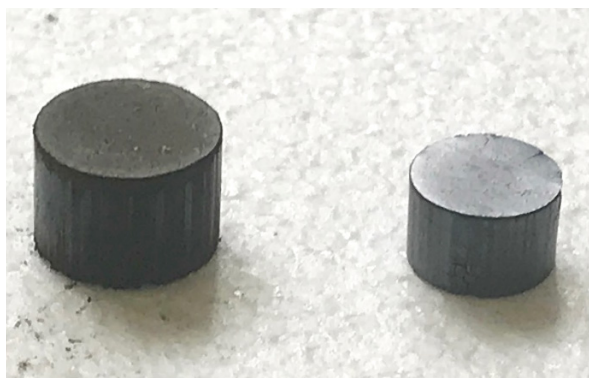


Рис. 9. Фотографии спрессованной (слева, плотность 6,6 г/см<sup>3</sup>) и затем спечённой при воздействии СВЧ излучения таблетки диоксида урана (справа, плотность 10,4 г/см<sup>3</sup>)

ности  $\text{UO}_2$ , равной 10,97 г/см<sup>3</sup>) происходит в температурном режиме, включающем выдержку при  $1650 \pm 20$  °С в течение не менее 4 ч. Открытая пористость таких таблеток составляет около 0,25 об. %, что ниже допустимого предела 1 об. %. При этом уменьшение времени выдержки с 4 до 2 ч приводит к снижению плотности полученных таблеток до ~10,35 г/см<sup>3</sup>. Показано также, что плотность получаемых таблеток практически не зависит ни от массы спекаемой таблетки в диапазоне от 2 до 6 г (табл. 5), ни от давления прессования "сырых" таблеток от 2 до 6 тс/см<sup>2</sup> или способа прессования (одно- или двухстороннее) (табл. 6). Таким образом, показана возможность спекания спрессованных таблеток диоксида урана при использовании СВЧ излучения в керамические топливные таблетки.

Таблица 5

Плотность спрессованных и спечённых под воздействием СВЧ излучения таблеток  $\text{UO}_2$  различной массы

Условия: давление прессования 3 тс/см<sup>2</sup> (60 атм);  
время прессования 15 мин (одностороннее); спекание при 1650 °С в течение 4 ч

Масса порошка, г	Масса таблетки, г		Плотность таблетки, г/см <sup>3</sup>	
	спрессованной	спечённой	спрессованной	спечённой
2,0021	1,9932	1,9828	6,44	10,43
3,0889	3,0849	3,0502	6,51	10,41
5,0194	5,0008	4,9702	6,57	10,40

Таблица 6

Плотность спрессованных и спечённых под воздействием СВЧ излучения таблеток  $\text{UO}_2$  в зависимости от давления и способа прессования порошка

Условия: масса порошка около 5 г; время прессования – 15 мин (одностороннее) и 15 + 15 мин (двухстороннее); спекание при 1650 °С в течение 4 ч

Давление прессования, тс/см <sup>2</sup>	Плотность спрессованной таблетки, г/см <sup>3</sup>		Плотность спечённой таблетки, г/см <sup>3</sup>	
	Одностороннее прессование	Двухстороннее прессование	Одностороннее прессование	Двухстороннее прессование
2	6,50	6,59	10,39	10,38
3	6,56	6,64	10,42	10,39
4	6,65	6,68	10,40	10,43
6	6,79	6,81	10,38	10,41
Среднее	–	–	10,40±0,02	10,40±0,02



## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведённых исследований разработаны научные основы новой технологии фабрикации топливных таблеток с использованием СВЧ излучения. Показана эффективность процесса получения порошка  $\text{UO}_2$  керамического качества непосредственно из азотнокислых растворов-реэкстрактов, образующихся при переработке ОЯТ, содержащих уран и различные органические восстановители. Определены условия термического превращения полученной смеси оксидов урана в порошки его диоксида под действием СВЧ излучения. Показана возможность получения порошка  $\text{UO}_2$  из  $\text{UO}_3$  в присутствии восстановителей (КГ и АГК) при использовании СВЧ излучения. Установлено, что характеристики получаемых порошков  $\text{UO}_2$  соответствуют требованиям ТУ 95414–2005 к порошкам керамического сорта для изготовления топливных таблеток. Доказано, что прессованные таблетки из полученных порошков  $\text{UO}_2$  можно спекать под воздействием СВЧ излучения в керамические таблетки с плотностью около  $10,40 \text{ г/см}^3$ , что также отвечает требованиям к ядерному топливу.

Полученные результаты представляют несомненный интерес и свидетельствуют о перспективности применения СВЧ излучения в технологических процессах изготовления оксидного ядерного топлива, которое значительно менее энергозатратно по сравнению с конвективным нагревом, используемым в современных технологиях производства топлива.

*Исследования проведены в рамках государственного задания ГЕОХИ РАН (0137–2019–0022).*

## ЛИТЕРАТУРА

1. Громов Б.В. Введение в химическую технологию урана. – М.: Атомиздат, 1978. – 336 с.
2. Бочаров А.С. Оптимизация технологии топливных таблеток из диоксида урана для обеспечения стабильности их качества в условиях массового производства: дисс... канд. техн. наук, 05.16.06. – М., 2005. – 153 с.
3. Куляко Ю.М., Трофимов Т.И., Перевалов С.А. и др. Получение и переработка оксидного ядерного топлива: новые подходы и методы // Вопросы радиац безопасности. – 2015. – № 3. – С.13–22.
4. Куляко Ю.М., Трофимов Т.И., Пилюшенко К.С. Получение смешанных порошков диоксидов актинидов термической восстановительной денитрацией с использованием СВЧ излучения. // Ядерная физика и инжиниринг. – 2018. – Т. 9. – № 5. – С. 425–428.
5. Куляко Ю.М., Трофимов Т.И., Пилюшенко К.С. и др. Получение порошков оксидов урана денитрацией его азотнокислых растворов с использованием СВЧ излучения // Радиохимия. – 2019. – Т. 61. – № 1. – С. 3–6.
6. 1999 JCPDS-International Centre for Diffraction Data. PCPDFWIN v. 2.02.
7. ОИ 001.350–2004. Порошки оксидов урана. Методика испытаний для определения насыпной плотности с использованием утряски.
8. ТУ 95414–2005. Порошок диоксида урана керамического сорта с содержанием изотопа уран-235 менее 5,0 %. Технические условия.
9. Пилюшенко К.С. Применение СВЧ излучения для получения порошка диоксида урана из триоксида урана в восстановительных условиях / Материалы XXVI Международной науч. конфер. студентов, аспирантов и молодых учёных "Ломоносов-2019", секция "Химия". – М.: Изд-во "Перо", 2019. – 70 Мб. [Электронное издание] – С. 750.
10. Kurzer F., Wilkinson M. Chemistry of carbohydrazide and thiocarbohydrazide // Chemical Reviews. – 1970. – V. 70. – P. 111–149.
11. Физическое материаловедение. Т. 6. Ч. 2. Ядерные топливные материалы / Под ред. Б.А. Калина. – М.: МИФИ, 2008. – 604 с.



УДК 539.163:574.6:614.876

© 2021

## ОСОБЕННОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ РАДИАЦИОННОЙ ОБСТАНОВКИ В ПРИБРЕЖНЫХ РАЙОНАХ РЕКИ ТЕЧА НА ПРИМЕРЕ МЕТЛИНСКОГО ПРУДА

*Ю.Г. Мокров, К.Ю. Мокров  
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Известно, что основным источником, определяющим параметры радиационного поля вблизи загрязнённого радионуклидами водного объекта (ВО), является  $\gamma$ -излучение его береговой полосы. На основе анализа архивных данных выявлены основные закономерности пространственного распределения (ПР) мощности экспозиционной и эффективной дозы (МЭД и МЭффД) вблизи таких ВО, обусловленные особенностями переноса многократно рассеянных  $\gamma$ -квантов в атмосфере. Показано, например, что поперечное ПР МЭД при удалении от различных ВО можно представить в виде экспоненциальной зависимости с одинаковым коэффициентом  $\alpha \approx 0,011 \text{ м}^{-1}$ , а максимальное значение МЭД в вертикальном ПР наблюдается на высоте  $\sim 10 \text{ м}$  от поверхности земли.

Предложена одномерная аналитическая модель опорного поля  $\gamma$ -излучения для точечного источника (ТИ), позволяющая получить приземные ПР МЭффД от береговой полосы водоёма произвольной формы, как суперпозиции ТИ. Модель апробирована путём сравнения экспериментальных и расчётных ПР МЭД на акватории Метлинского пруда для геометрии линейных источников (ЛИ).

С использованием архивных (1951–1954 гг.) данных радиационных обследований Метлинского пруда и результатов ретроспективной термолюминесцентной дозиметрии (ТЛД) для проб кирпичей, отобранных из различных мест Метлинской мельницы, предложен новый методический подход к оценке дозы внешнего облучения населения когорты реки Течи с целью уточнения радиационных рисков при пролонгированном облучении. Показано, что основное внешнее радиационное воздействие на жителей с. Метлино произошло с 13 по 22 октября 1951 года в период "промывки" прудов-отстойников. Полученные результаты позволяют предполагать, что для значительной части населения внешнее радиационное воздействие носило не пролонгированный, а острый характер.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** РЕКА ТЕЧА, РАДИОАКТИВНОЕ ЗАГРЯЗНЕНИЕ, ДОННЫЕ ОТЛОЖЕНИЯ, ВНЕШНЕЕ ОБЛУЧЕНИЕ НАСЕЛЕНИЯ

До настоящего времени все рекомендации МКРЗ по оценке радиационных рисков основаны на результатах обследования населения, пережившего атомную бомбардировку в Японии, т.е. на основе изучения показателей здоровья лиц, подвергшихся острому радиационному воздействию с высокой мощностью дозы. Проводимые в Уральском научно-практическом центре радиационной медицины (УНПЦ РМ) исследования по когорте населения реки Течи [1] имеют важное фундаментальное значение и направлены на оценку радиационных рисков

при облучении с относительно небольшой мощностью дозы в течение достаточно длительного периода времени. Детальная и корректная реконструкция доз внешнего облучения населения, проживавшего на р. Тече (спустя 70 лет после радиационного инцидента), представляет собой чрезвычайно сложную задачу. В данной работе предпринята попытка разработать новый методический подход к оценке дозы внешнего облучения населения, проживавшего на р. Тече, с целью уточнения существующих радиационных рисков.

# ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Жидкие радиоактивные отходы (ЖРО) радиохимического производства сбрасывались в р. Течу в точке, удалённой на 300 м от плотины водоема В-2 (оз. Кызылташ) [1, 2]. Для разбавления ЖРО из водоема В-2 в р. Течу сбрасывалась озёрная вода. Загрязнённые воды поступали сначала в Кокшаровский пруд (водоём В-3), а затем в Метлинский пруд (водоём В-4). Село Метлино (рис. 1) являлось ближайшим населённым пунктом (НП) к месту сброса ЖРО (~7 км) и располагалось на северном, южном и восточном берегах Метлинского пруда.

Плотины П-3 и П-4 были восстановлены (реконструированы) на месте ранее суще-

ствовавших запруд Кокшаровского пруда (11.08.1951) и Метлинского пруда (1955–1956 гг.). Водоёмы В-3 и В-4 выполняли роль проточных водоёмов-отстойников. За время нахождения воды в водоёмах (от 3 до 25 сут) происходило существенное очищение воды за счёт процессов радиоактивного распада, сорбции радионуклидов (РН) донными отложениями (ДО) и за счёт осаждения загрязнённых РН взвесей на дно. В начале 1950-х годов в верховье р. Течи помимо естественных источников (зоо-, фитопланктон и др.) существовало по крайней мере ещё два мощных техногенных источника поступления взвешенных частиц. Во-первых, вода оз. Кызылташ (в районе плотины П-2) содержала большое количество [3]

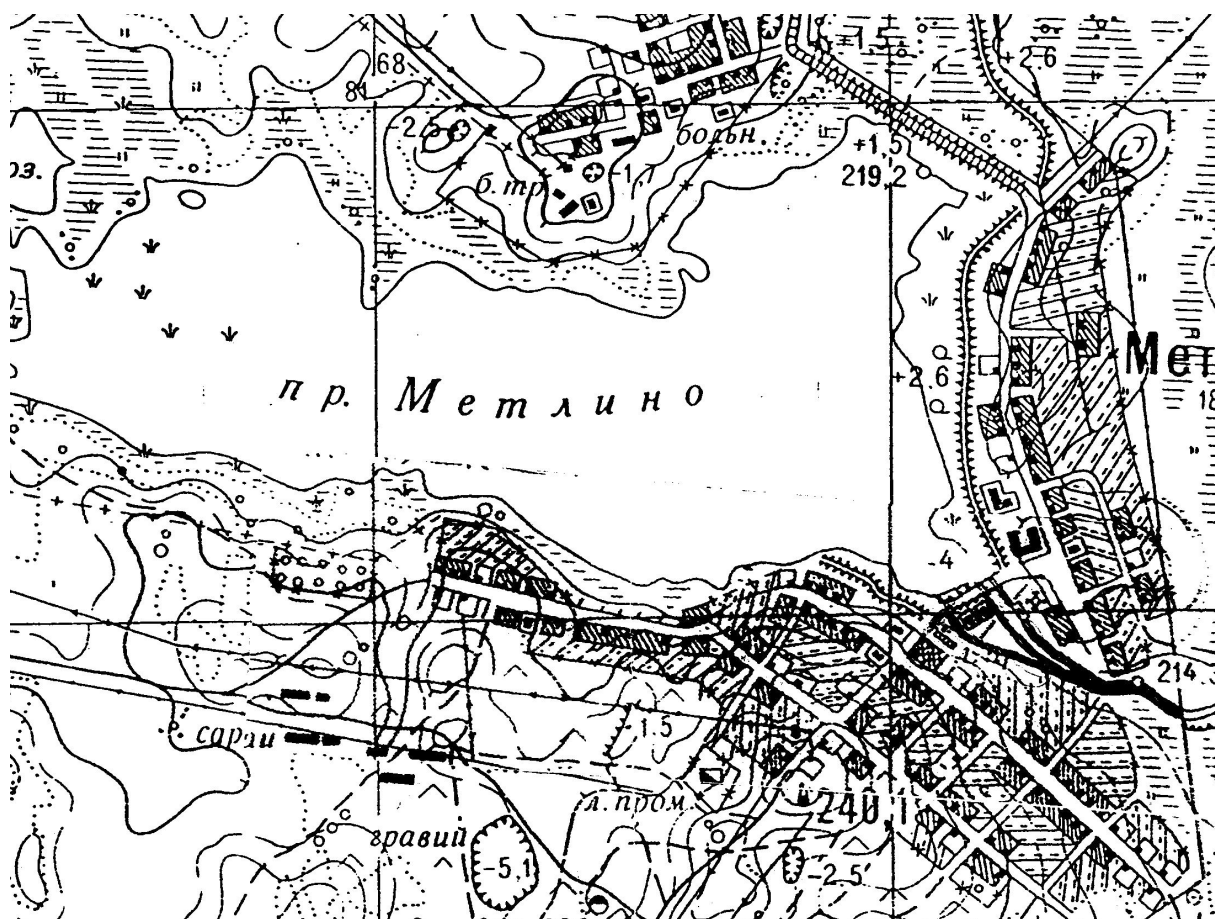


Рис. 1. Фрагмент карты с. Метлино и Метлинского пруда (до 1956 г.)

взвешенных веществ в виде частиц глины и ила. Это было связано с тем, что со дна водоёма В-2 вблизи плотины П-2 намывался песок для нужд строительства. Вода из водоёма В-2 с "чистыми" взвесями поступала через плотину П-2, смешивалась с ЖРО и далее поступала в водоёмы В-3 и В-4. При этом значительная часть активности ЖРО сорбировалась на взвеси. Вторым техногенным источником поступления взвешенных веществ в воды р. Течи являлись нерастворимые в воде осадки солей, содержащиеся в ЖРО. Центрифугирование отобранных проб воды показало, что активность осадка составляла от 40 до 90 % от исходной активности. Причём основная (до 90 %) часть активных взвесей осаждалась на дне водоёмов, что привело к обострению радиационной обстановки. Так, в августе 1951 г. на берегах Метлинского пруда мощность экспозиционной дозы (МЭД) достигала 1500 мкР/с [4]. С целью улучшения радиационной обстановки в районе прудов-отстойников, в октябре 1951 г. была осуществлена "промывка" водоёмов В-3 и В-4. С 13 по 17 октября 1951 г. из водоёмов В-3 и В-4 была сброшена вся вода, а затем, с 17 по 22 октября, при открытых шандорах плотин П-3 и П-4 был осуществлён попуск воды из водоёма В-2. Всего за шесть суток было сброшено ~15 млн м<sup>3</sup> воды. Вместе с водой в речную систему поступило большое количество взмученных ДО, загрязнённых РН, и произошло масштабное загрязнение всей речной системы [5].

В 1950-х годах результаты измерений МЭД с использованием переносных дозиметрических приборов являлись основным и наиболее достоверным показателем, характеризующим радиационную обстановку. Измерения МЭД проводились [5] у уреза воды, а также в продольном и поперечном направлениях по отношению к руслу. Считалось, что пространственные распределения (ПР) МЭД в поперечных направлениях (перпендикулярно руслу) характеризуют границы затопляемой части поймы реки. Однако в ряде пунктов контроля высокие значения МЭД наблюдались на участках, расположенных на значительном расстоянии от русла реки, которые никогда не затоплялись. Продольные ПР МЭД (вдоль русла реки) косвенным образом характеризуют загрязнение  $\gamma$ -излучающими нуклидами ДО. Первые такие

измерения были проведены в августе 1951 года. В данной работе на примере с. Метлино с использованием архивных результатов радиационных обследований водоёма В-4 предпринята попытка выявить основные закономерности и разработать методические подходы к оценке радиационных характеристик поля внешнего  $\gamma$ -излучения вблизи загрязнённых радионуклидами водных объектов.

### ПОПЕРЕЧНЫЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ МЭД

Рассмотрим некоторые результаты измерений поперечных ПР МЭД, выполненных на различных водоёмах в разные периоды времени. Особый интерес представляют результаты самых ранних измерений, поскольку при этом можно не учитывать загрязнение почвы в результате аварий и инцидентов.

#### *Водоём В-17 (Старое болото)*

Первые дозиметрические измерения в районе водоёма В-17 (Старое болото) были выполнены в мае-июне 1950 г. В тот период времени болото представляло собою низину с заболоченным участком длиной 700–800 м и шириной загрязнённой зоны 20–30 м [6]. Измерения были выполнены дозиметром "МАК" с камерой "АР" в направлении, перпендикулярном оси водотока. Результаты этих измерений приведены на рис. 2 и позволяют сделать следующие выводы:

- максимальные значения МЭД наблюдались у уреза воды;
  - ПР МЭД можно представить в виде двух характерных участков;
  - на первом участке, расположенном в узкой прибрежной полосе шириной не более 25 м, отмечается резкое (более 100 раз) снижение МЭД;
  - при дальнейшем удалении от водоёма (на втором участке) наблюдается более плавное монотонное снижение МЭД, которое хорошо аппроксимируется экспоненциальной зависимостью
- $$P(x) = P_0 \cdot e^{-\alpha x}, \quad (1)$$
- где  $P_0$  и  $P(x)$  – значения МЭД на урезе воды (экстраполировано для  $x=0$ ) и на удалении  $x$ , м;
- $\alpha$  – экспоненциальный коэффициент,  $\alpha=0,011 \text{ м}^{-1}$ .

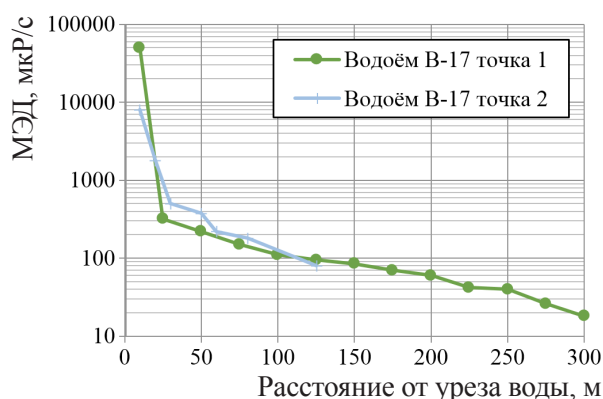


Рис. 2. Результаты измерений МЭД в поперечном направлении от водоёма В-17, выполненных в мае-июне 1950 г. [6]

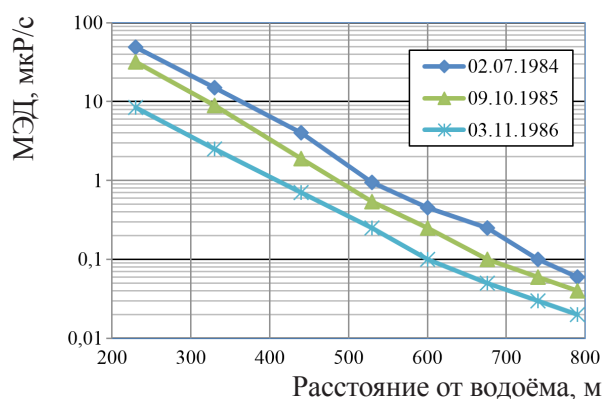


Рис. 3. Результаты измерений МЭД в северном направлении от водоёма В-9 (Карачай), выполненных в период 1984–1986 гг. [7]

### Водоём В-9 (Карачай)

Все результаты измерений ПР МЭД в районе водоёма В-9 (рис. 3) показывают [7], что они имеют такой же вид, как на водоёме В-17:

- наибольшие значения МЭД за весь период эксплуатации (и все времена года) фиксировались на урезе воды (или льда) по всему периметру водоёма, а наименьшие – в центральной части акватории (в 20–50 раз меньше, чем у уреза воды);

- при удалении от уреза воды (за пределы акватории) на расстоянии 20 м наблюдалось резкое (более 10 раз) уменьшение МЭД;

- при дальнейшем удалении от уреза воды наблюдалось снижение МЭД по экспоненциальному закону вида (1) с подэкспоненциальным коэффициентом  $\alpha=0,011 \text{ м}^{-1}$ . Это означает, что в любом направлении от водоёма на расстоянии более 20 м от береговой полосы наблюдается снижение МЭД в два раза каждые  $L_{1/2} = L_n(2)/\alpha = 63 \text{ м}$ , где  $L_{1/2}$  – длина полууменьшения МЭД [7].

В работе [7] показано, что изменения МЭД (до 3–5 раз в пределах года) практически не зависят от объёмной активности (ОА) воды в водоёме, а определяются изменением уровня воды в водоёме (при понижении уровня на 10 см МЭД возрастает в 1,5 раза), экранированием источников  $\gamma$ -излучения слоем снега и льда зимой, изменением рассеивающей (отражающей)

способности воздуха за счёт сезонного изменения его влажности.

Измерения выполнялись прибором ДРГ-02 в направлении на северо-запад от водоёма по дороге, которая подвергалась периодической дезактивации. На расстоянии ~320 м от водоёма на краю дороги располагалось несколько железобетонных зданий высотой 15 м. Наличие этих зданий в зоне действия  $\gamma$ -излучения от водоёма снижает значения МЭД. При этом экранирующий теневой эффект (отклонение от экспоненциальной зависимости (1)) наблюдается только на расстояниях, которые меньше высоты здания [7]. Снижение МЭД за стеной здания достигало 3,6 раз. На расстоянии 7 м от северной стены здания, равном половине высоты здания, МЭД снижалась в 2 раза [7].

### Река Теча

Результаты измерений поперечных ПР МЭД [4-5] на р. Теча позволяют выделить два характерных типа строения речной долины, определяющие формирование радиационной обстановки. К первому типу следует отнести верхнюю часть реки, где она протекает по широкой и неглубокой ложине, а правый берег реки большей частью обрывистый, высотой до трёх метров. При этом положение береговой полосы правого берега осталось практически неизменным при различных расходах воды в



реке. Анализ результатов измерений ПР МЭД для такого типа строения речной долины показывает, что на удалении 20–400 м от уреза воды эти поперечные распределения хорошо описываются уравнением (1) с коэффициентом  $\alpha \approx 0,01 \text{ м}^{-1}$ . Подобные распределения наблюдаются и в пунктах контроля: водоём В-3, водоём В-4 (с. Метлино), Теча Брод, Нов. Асаново, Назарово, М. Таскино, Ибрагимово и др. [2, 8].

Ко второму типу следует отнести участки реки, расположенные на относительно пологих берегах широкой поймы, подверженных затоплению в период попуска больших объёмов воды или весеннего половодья. В работе [2] было показано, что основное радиоактивное загрязнение поймы на этих участках сформировалось в период промывки водоёмов В-3 и В-4 (октябрь 1951 г.) в результате осаждения на поверхность поймы загрязнённых РН взвесей. При этом поперечные ПР МЭД имеют явно выраженный немонотонный характер. Максимальная плотность радиоактивного загрязнения поймы, а, следовательно, и МЭД наблюдается не у уреза воды, а на низинных участках поймы, заросших растительностью, где скорость течения реки была минимальна, и создавались благоприятные условия для осаждения взвешенных частиц. Тем не менее, даже на этих участках реки в поперечных ПР МЭД просматривается вклад излучения от береговой полосы.

#### ВЫСОТНЫЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ МЭД

В работах [5, 8] было впервые отмечено, что ПР МЭД возрастает по мере удаления (по вертикали) от поверхности речной воды. В работе [7] отмечалось, что в 1955 г. на расстоянии ~500 м от водоёма В-9 значение МЭД у поверхности земли было в 2 раза меньше, чем на уровне четвёртого этажа здания. Аналогичные результаты были получены и в работе [9] на берегу Метлинского пруда (водоём В-4), где указывалось, что значения мощности поглощённой дозы (и накопленной поглощённой дозы) линейно возрастают с высотой (на стене Метлинской мельницы) от ~7 мГр/год на высоте 5 м до 18 мГр/год на высоте 16 м.

Приземная атмосфера имеет низкую плотность и преимущественно состоит из ядер

лёгких элементов (азот, кислород). Поэтому над наземным источником  $\gamma$ -излучения образуется "радиационное облако" грибовидной формы из многократно рассеянных  $\gamma$ -квантов. Причём максимальная плотность потока  $\gamma$ -квантов (или МЭД) в вертикальном распределении наблюдается не на поверхности земли, а на некоторой высоте, поскольку  $\gamma$ -квант, поступивший из приземного слоя атмосферы в почву, имеет значительно большую вероятность поглотиться, чем вернуться обратно. Поэтому при расчётах переноса  $\gamma$ -излучения от поверхностного источника необходимо учитывать процесс многократного рассеивания и накопления  $\gamma$ -квантов в слое атмосферы высотой не менее 1 км.

#### АНАЛИЗ РАДИАЦИОННОЙ ОБСТАНОВКИ В с. МЕТЛИНО

Выше было показано, что радиационная обстановка в районе ВО определялась  $\gamma$ -излучением узкой береговой полосы (шириной не более нескольких метров), которая загрязнена РН в результате осаждения "свежих" взвесей в прибрежной зоне от текущих сбросов ЖРО или при поступлении на берег "старых" (накопленных ранее) ДО, например, при волновом прибое или при понижении уровня воды в водоёме.

Распределение МЭД от береговой полосы, в свою очередь, можно представить в виде суммы двух составляющих: нерассеянное (прямое) и многократно рассеянное излучение. Зона влияния нерассеянной составляющей излучения распространяется на расстояние не более ~20 м от источника (в пределах прямой видимости) и определяется конкретной геометрией и строением береговой полосы (рельефом дна и берега у уреза воды, наличием откосов, типом грунтов и др.), то есть ПР  $\gamma$ -излучающих РН в прибрежной зоне (вблизи уреза воды). Детальные расчёты пространственно-энергетического распределения (ПЭР)  $\gamma$ -излучения для этой составляющей достаточно трудоёмки, но они, как правило, не представляют практического интереса из-за ограниченных размеров зоны распространения нерассеянного излучения. Вторая составляющая излучения (многократно рассеянные  $\gamma$ -кванты) может распространяться на расстояние нескольких сотен метров от ис-



точника и определяется только свойствами рассеивающей среды – плотностью и составом приземной атмосферы (влажностью, давлением). ПЭР  $\gamma$ -излучения для этой составляющей может быть относительно легко рассчитано с использованием современных программных средств.

### Методика расчёта переноса $\gamma$ -излучения в атмосфере

Расчёт переноса  $\gamma$ -излучения от источника сложной геометрической формы с учётом процесса многократного рассеивания  $\gamma$ -квантов в атмосфере целесообразно проводить в два этапа. Сначала необходимо оценить параметры (построить аналитическую модель) поля  $\gamma$ -излучения от точечного источника (ТИ). На втором этапе, используя свойства аддитивности, задаётся конкретная геометрия источника излучения и проводится численное интегрирование. Для учёта высотных эффектов необходимо построить опорную модель поля  $\gamma$ -излучения от ТИ в двумерной (цилиндрической) геометрии. В данной работе для простоты и наглядности использовалась одномерная модель опорного поля для высоты 1 м от поверхности почвы, а при сравнении архивных данных (приведены для МЭД) и расчётных результатов (для мощности эффективной дозы МЭффД) будем считать, что 1 Зв = 100 Р.

На предварительной стадии с использованием программы TDMCC, реализующей метод Монте-Карло, были проведены расчёты пространственно-энергетического (группового) распределения рассеянного в атмосфере  $\gamma$ -излучения от наземного ТИ с энергией 661 кэВ (как для  $^{137}\text{Cs}+^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) для нескольких дискретных точек (на высоте 1 м от земли), удалённых от источника на расстояние  $R$ . Это групповое энергетическое распределение было конвертировано в ПР мощности эффективной дозы (МЭффД) –  $P_{\text{point}}(R)$  (табл. 1), которое было аппроксимировано аналитической функцией вида:

$$P_{\text{point}}(R) = \exp(a_0 + a_1 \ln(R) + a_2 (\ln(R))^2 + a_3 (\ln(R))^3), \quad (2)$$

где  $a_0 = -15,355$ ;  $a_1 = -2,1958$ ;  $a_2 = -0,24345$ ;  $a_3 = 0,070644$  (при  $R < 50$  м);

$$a_0 = 14,829; a_1 = -22,371; a_2 = 4,5843; a_3 = -0,34935 \text{ (при } 50 \text{ м} < R < 700 \text{ м)}.$$

Аналитический вид ПР МЭффД от ТИ позволяет получить ПР от источника произвольной формы. В четвёртой колонке табл. 1, для примера, приведено ПР МЭффД от линейного источника (ЛИ) бесконечной длины с постоянной активностью на единицу длины  $A_L=1,0$  Бк/м. Результаты этих расчётов показывают, что относительные ПР МЭффД на расстоянии более 200 м от ТИ и ЛИ близки между собой и могут быть хорошо аппроксимированы функцией вида (1). Для примера, на рис. 4 приведены ПР МЭД (мкР/с) в поперечных направлениях от реки Течи (правый берег, середина водоёма В-3, измерено 07.08.1952) [5] и от водоёма В-9 (измерено 13.06.1986) [7], в сравнении с расчётным ПР МЭффД (отн. ед.) от бесконечного наземного ЛИ  $\gamma$ -квантов с энергией 0,66 МэВ.

Из анализа рис. 4 следует:

- все три ПР представляют собой функ-

Таблица 1

Распределения МЭффД в зависимости от расстояния  $R$  для точечного источника (ТИ) –  $P_{\text{point}}(R)$ , полученные расчётом по TDMCC и по уравнению (2), и распределение для бесконечного линейного источника (ЛИ) –  $P_{\text{Line}}(R)$ , полученное суперпозицией ТИ

$R$ , м	ТИ, (*) (TDMCC), мкЗв/ч/Бк	ТИ, $P_{\text{point}}(R)$ , ур-е (2), мкЗв/ч/Бк	ЛИ, $P_{\text{Line}}(R)$ (мкЗв/ч)/ (Бк/м)
1	2,15E-7	2,14E-7	5,36E-7
5	4,34E-9	4,47E-9	6,25E-8
20	2,12E-10	2,24E-10	1,61E-8
50	6,66E-11	6,57E-11	7,71E-9
100	1,20E-11	1,27E-11	2,67E-9
200	2,14E-12	1,94E-12	6,30E-10
300	4,22E-13	4,39E-13	1,81E-10
400	1,13E-13	1,17E-13	5,72E-11
500	3,43E-14	3,46E-14	1,95E-11
600	1,12E-14	1,11E-14	7,00E-12
700	3,85E-15	3,81E-15	2,64E-12

Примечание. (\*) – расчёт выполнен сотрудницей ИБРАЭ РАН Кизуб П.А.

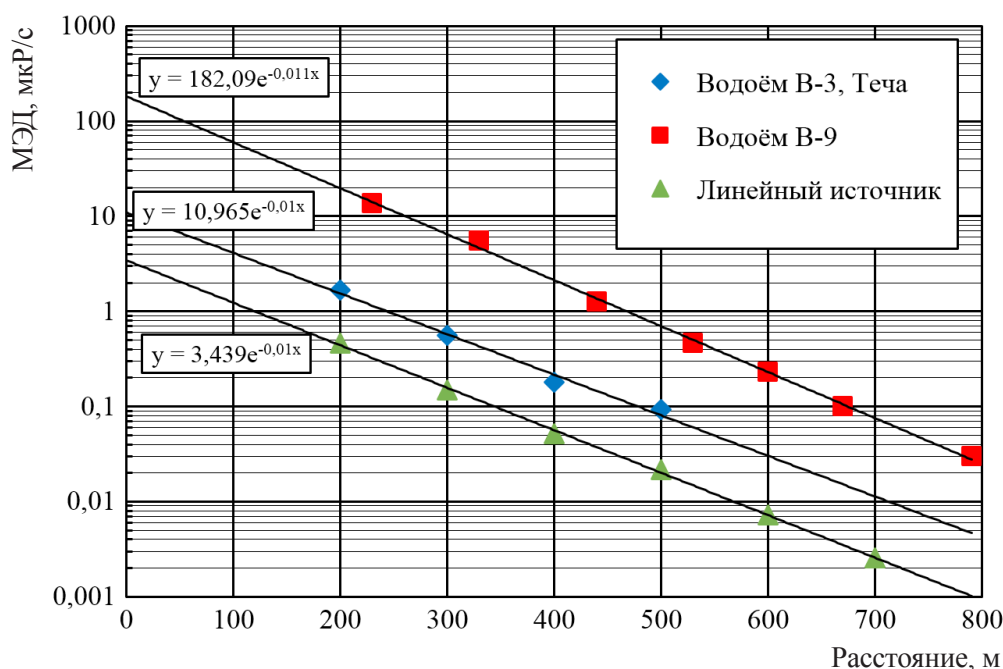


Рис. 4. Распределения МЭД в северо-западном направлении от водоёма В-9 (13.06.1986) [7], в южном направлении от водоёма В-3 (август 1952 г.) [5] и расчётное распределение МЭффД (отн.ед.) от гипотетического бесконечного линейного источника  $\gamma$ -квантов с энергией 0,66 МэВ

ции вида (1) с одинаковым значением экспоненциального коэффициента  $\alpha \approx 0,011 \text{ м}^{-1}$ ;

– значения МЭД от водоёма В-9 всего в 17 раз больше, чем от водоёма В-3, хотя отношение соответствующих значений ОА воды отличается на пять порядков;

– подтвержден вывод, что ПР МЭД от водоёмов В-3 и В-9 обусловлены рассеянным в атмосфере излучением береговой полосы этих водоёмов.

В этих условиях МЭД на прибрежных участках будет определяться не только уровнем воды и рельефом дна прибрежной зоны водоёма (высотой экранирующего слоя "чистой" воды, снега или льда над источником), но и энергией  $\gamma$ -квантов РН, накопленных на береговой полосе. С целью изучения влияния средней энергии  $\gamma$ -квантов, испускаемой источником на береговой полосе водоёмов, на значение коэффициента  $\alpha$  были проведены варианты расчёты поперечных распределений МЭД от ТИ при различной энергии  $\gamma$ -квантов. Все по-

лученные ПР имеют экспоненциальный вид (1), но отличаются значением экспоненциального коэффициента  $\alpha$ :

- для  $E = 0,3 \text{ МэВ}$ ,  $\alpha = 0,014 \text{ м}^{-1}$  ( $L_{1/2} = 49,5 \text{ м}$ );
- для  $E = 0,66 \text{ МэВ}$ ,  $\alpha = 0,011 \text{ м}^{-1}$  ( $L_{1/2} = 63 \text{ м}$ );
- для  $E = 1,0 \text{ МэВ}$ ,  $\alpha = 0,010 \text{ м}^{-1}$  ( $L_{1/2} = 69,3 \text{ м}$ );
- для  $E = 1,5 \text{ МэВ}$ ,  $\alpha = 0,009 \text{ м}^{-1}$  ( $L_{1/2} = 77 \text{ м}$ ).

Наилучшим образом расчётные данные совпадают с экспериментальными при  $E = 0,66 \text{ МэВ}$  ( $L_{1/2} = 63 \text{ м}$ ). Такой (или близкой к  $E = 0,66 \text{ МэВ}$ ) энергией  $\gamma$ -квантов обладает не только  $^{137}\text{Cs}$ , но и ряд других осколочных радионуклидов:  $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru} + ^{106}\text{Rh}$ ,  $^{144}\text{Ce} + ^{144}\text{Pr}$  и др.

В общем виде МЭффД в некоторой точке с координатами  $(x_0, y_0)$  для ВО произвольной формы с периметром  $\Omega$ , можно записать в виде:

$$P(x_0, y_0) = \oint_{\Omega} \{ \sigma(x, y) \cdot P_{point}(R) \} \cdot dx \cdot dy, \quad (3)$$

$$R = \sqrt{(x_0 - x)^2 + (y_0 - y)^2}, \quad (4)$$

где  $\sigma(x,y)$  – плотность радиоактивного загрязнения береговой полосы, Бк/м;

$R$  – расстояние между точками с координатами  $(x,y)$  и  $(x_0,y_0)$ , м.

Интегрирование производится по всему периметру береговой полосы  $\Omega$ .

Непосредственное использование уравнения (3) затруднено, поскольку неизвестен вид распределения плотности радиоактивного загрязнения береговой полосы  $\sigma(x,y)$  по периметру водоёма. Тем не менее, в ряде случаев оценочные расчёты можно провести с использованием уравнения (1) в геометрии двух бесконечных параллельных ЛИ. В более сложных ситуациях, когда периметр  $\Omega$ , может быть представлен в виде суммы  $N$  ( $i = 1, 2, \dots, N$ ) ЛИ конечной длины  $L_i$  (м) и постоянной мощности  $\sigma_i$  (Бк/м), можно использовать:

$$P(x_0, y_0) = \sum_{i=1}^N \left[ \sigma_i \cdot \int_{L_i} P_{point}(R) dx dy \right]. \quad (5)$$

#### Модель линейных источников

Водоём В-4 вдоль всех берегов, за исключением отдельных участков, сильно зарос водной растительностью (тростник, камыш и

др.) [5, 8], что затрудняло подход к водоёму и определение положения береговой полосы, а максимум в ПР МЭД отсутствовал или был выражен в неявном виде. Поэтому значительная часть измерений МЭД была выполнена на акватории с лодки. Точные координаты и глубина водоёма в месте измерений отсутствуют (не определялись).

Для понимания процессов формирования радиационной обстановки в районе водоёма В-4 особый интерес представляют результаты измерений МЭД на акватории водоёма, выполненные с лодки 10.12.1951 (рис. 5) [10]. В связи с большими объёмами поступления горячих вод из водоёма В-2 через плотину П-2 в ноябре и декабре 1951 г. (более 4,5 млн м<sup>3</sup> в месяц) в верховье р. Теча и на водоёмах В-3 и В-4 не устанавливался устойчивый ледовый покров. Тем не менее, на береговой полосе реки и водоёмов могло происходить образование наледей, что приводило к экранированию источника  $\gamma$ -излучения и снижению МЭД.

Продemonстрируем проведение оценочных расчётов МЭД с использованием уравнения (1) для геометрии бесконечных параллельных ЛИ в предположениях:

– участки береговой полосы в районе

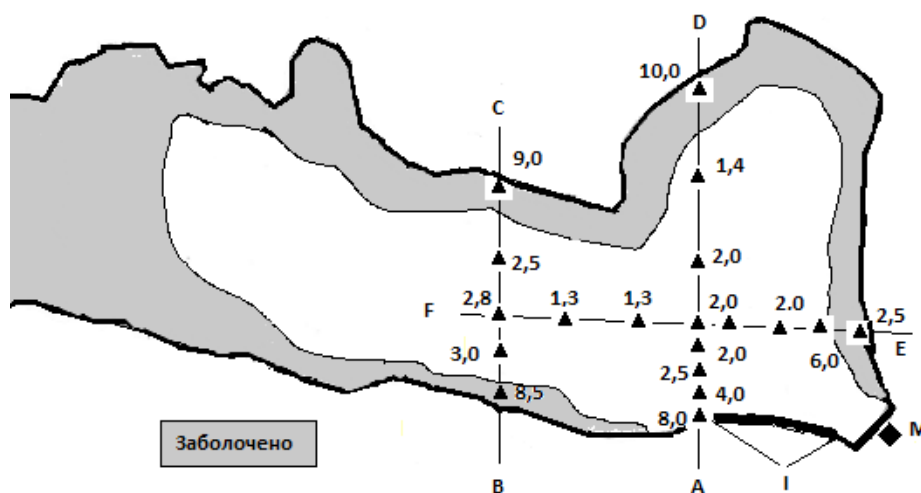


Рис. 5. Результаты измерений МЭД (мкР/с) на акватории водоёма В-4, выполненных с лодки (10.12.1951) [10]. Положение точек измерений отмечено треугольником ( $\blacktriangle$ ), Метлинская мельница (М), участок с максимальным загрязнением береговой полосы (I)

точек "С" и "В" представим в виде двух параллельных ЛИ, ширина акватории (по линии "С-В") составляет  $W \sim 400$  м;

– на участке "С-В" были проведены измерения МЭД в пяти точках, если предположить, что эти точки равноудалены друг от друга, то расстояние между ними будет  $W/4 \sim 100$  м;

– значение МЭД в каждой точке измерения определяется рассеянным излучением от ЛИ в сумме от правого (ПБ) и левого берега (ЛБ).

Значение МЭД в любой точке акватории (по линии "С-В"), удалённой от ЛБ на расстоянии  $x$  –  $P^\Sigma(x)$  запишем в виде суммы излучения от ЛИ на ПБ и ЛБ:

$$P^\Sigma(x) = P_0^{ЛБ} \cdot e^{-\alpha x} + P_0^{ПБ} \cdot e^{-\alpha(W-x)} \quad (6)$$

Тогда для точки "В" (при  $x=W$ ) уравнение (6) будет:

$$P^\Sigma(W) = P_0^{ЛБ} \cdot e^{-\alpha W} + P_0^{ПБ} = 8,5 \text{ мкР/с}, \quad (7)$$

а для точки "С" (при  $x=0$ ) уравнение (6) будет:

$$P^\Sigma(0) = P_0^{ЛБ} + P_0^{ПБ} \cdot e^{-\alpha W} = 9,0 \text{ мкР/с}. \quad (8)$$

Решая систему уравнений (7) и (8), получаем:

$$P_0^{ЛБ} = 8,39 \text{ мкР/с}, P_0^{ПБ} = 8,9 \text{ мкР/с}.$$

Оценочный расчёт значений МЭД для остальных точек приведён в табл. 2, где две последние строки показывают схему расчёта МЭД (на 10.12.1951) на территории с. Метлино на расстоянии 500 и 600 м от ЛБ (100 и 200 м от ПБ на юг).

Совпадение расчётных и экспериментальных значений МЭД (точки 1–5) следует признать удовлетворительным. Поэтому результаты измерений МЭД, выполненные на акватории

водоёма В-4, содержат такую же ценную информацию, как и данные, полученные на урезе воды, и позволяют оценивать распределение МЭД на территории с. Метлино.

### Оценка доз облучения жителей с. Метлино (1951–1956 гг.)

Специалисты УНПЦ РМ в основу традиционной методики расчётов дозы внешнего облучения жителей с. Метлино положили данные о значениях МЭД на урезе воды. В табл. 3 собраны практически все имеющиеся в архиве результаты измерений МЭД на акватории и в прибрежной зоне с. Метлино за период до отселения жителей в 1956 г. Дополнительно в табл. 3 приведены расчётные оценки средних значений МЭД –  $P_{v,j}$  и экспозиционной дозы облучения –  $D_{v,j}$  за соответствующий  $J$ -й месяц для точки "I", расположенной в с. Метлино на расстоянии  $R=200$  м южнее точки "А" (рис. 5). В последней колонке табл. 3 приведены годовые значения накопленной дозы –  $D_{I\Sigma}$  как суммы месячных значений  $D_{v,j}$  (за соответствующий период времени).

К табл. 3 следует сделать следующие комментарии:

– соотношения результатов измерений МЭД на ПБ, ЛБ и в центре акватории водоёма В-4 остаются практически постоянными за весь период наблюдений и соответствуют данным за 10.12.1951 (табл. 2);

– в результате экранирования береговой полосы слоем снега и льда значения МЭД, из-

Таблица 2

Сравнение экспериментальных распределений МЭД (10.12.1951) на акватории водоёма В-4 по линии "С-В" (рис. 5) с расчётными данными

Номер точки	Расстояние от ЛБ, м	МЭД от ЛБ, отн.ед./ (мкР/с)	МЭД от ПБ, отн.ед./ (мкР/с)	Сумма МЭД, мкР/с (Расчёт)	МЭД, мкР/с (Измерено)
1	0	1,0/8,90	0,012/0,10	9,0	9,0
2	100	0,333/2,96	0,037/0,31	3,3	2,5
3	200	0,111/0,99	0,111/0,93	1,9	2,8
4	300	0,037/0,33	0,333/2,79	3,1	3,0
5	400	0,012/0,11	1,0/8,39	8,5	8,5
–	500	0,0041/0,036	0,333/2,79	2,8	–
–	600	0,0014/0,012	0,111/0,93	0,94	–

Таблица 3

Результаты измерений МЭД (мкР/с) на акватории и в прибрежной зоне водоёма В-4 (рис. 5) и результаты оценки дозы в точке "V", расположенной в с. Метлино за период 1951–1954 гг.

Дата, ДД.ММ.ГГ	Средняя часть В-4, ось "С-В"			Нижняя часть В-4, ось "А-Д"			Оценки для точки "V"		
	ПБ	ЛБ	Центр	ПБ	ЛБ	Центр	$P_{V,P}$ мкР/с	$D_{V,P}$ Р	$D_{V,\Sigma}$ Р
??.08.51	100–1500		50	100–1500		50	11	29	61 (08.51–12.51)
Промывка водоёмов (13.10.51–22.10.51)							7,3 <sup>(2)</sup>	19 <sup>(2)</sup>	
28.10.1951 – Прекращён сброс технологических ЖРО									
11.11.51 <sup>(1)</sup>	45	35	3,5–5	38	15	15	4,2	11	
10.12.51	8,5	9	2,5–3	8	10	2	0,89	2,3	
??.02.52	4–5	–	1–2	–	–	–	0,5	1,3	21 (1952)
??.06.52	8–12		1–2	8–12		1–2	1,1	2,9	
??.08.52	4–10		0,5–1	4–10		0,5–1	0,78	2,0	
В ноябре 1952 г. р. Теча на всей длине покрылась льдом									
16.12.52	1,5–2,5	–	–	1–2,5	–	–	0,19	0,51	
??.05.53	4,5	–	–	–	–	–	0,5	1,3	
1 кв. 54	1,5–3		–	1,5–3		–	0,25	0,65	4 (1954)

Примечание: <sup>(1)</sup> На результаты этих измерений могли повлиять аварийные сбросы ЖРО [3]. <sup>(2)</sup> Принято по данным за август (без учёта периода "промывки").

меренные в зимний период, приняты в 2,5 раза меньше, чем в летний;

– средний эффективный период полураспада МЭД за 1951–1956 гг. принят равным 220 сут;

– годовые дозы облучения  $D_{V,\Sigma}$  определялись путём интерполяции и экстраполяции соответствующих месячных доз  $D_{V,j}$  (табл. 3).

Суммарная накопленная экспозиционная доза внешнего облучения в воздухе для точки "V" в с. Метлино за период с августа 1951 г. до конца 1956 г. оценивается  $D_{V,\Sigma} \sim 98$  Р (без учёта за период "промывки"), а для периода 1949–1956 гг. – 150 Р. С учётом стандартной модели жизнедеятельности [1] дозу облучения для населения, проживавшего в точке "V" за 1949–1956 гг., –  $D_{ж,V}$  можно оценить:

$$D_{ж,V} = D_{V,\Sigma} \cdot \delta_{\Sigma},$$

$$\delta_{\Sigma} = (\delta_1 + \delta_2 \cdot K_3 - \delta_3 + \delta_4 \cdot \exp(\alpha \cdot R)), \quad (9)$$

$$\delta_1 + \delta_2 + \delta_3 + \delta_4 = 1,0.$$

Параметры  $\delta_1$ ,  $\delta_2$ ,  $\delta_3$ , и  $\delta_4$  – определяют относительную (среднюю за год) продолжительность пребывания жителей, соответственно: на открытой местности (вне зданий), внутри

зданий с коэффициентом защиты  $K_3$ , вне загрязнённой территории и на береговой полосе пруда. Для взрослых жителей рекомендуется [1] принимать  $\delta_1=0,23$ ;  $\delta_2=0,42$ ;  $\delta_3=0,33$ ;  $\delta_4=0,027$ ;  $K_3=0,5$  и тогда  $\delta_{\Sigma}=0,35$ ;  $D_{ж,V}=53$  Р (530 мГр). Этот результат, полученный в условиях хронического воздействия, хорошо согласуется со средним значением накопленной дозы для всех жителей с. Метлино, полученным для традиционного подхода (~500 мГр) [1].

#### Оценка радиационной обстановки в с. Метлино в период "промывки"

Период "промывки" водоёмов продолжался с 13 по 22 октября 1951 г. (10 сут), при этом ширина оголённых ДО водоёма В-4 на различных участках изменялась от 50 до 300 м [2]. Результаты измерений МЭД в период промывки отсутствуют (измерения не выполнялись). Для оценки радиационной обстановки в селе необходимо определить поверхностную активность и площадь оголённых ДО.

На рис. 6 приведена карта-схема отбора проб и результаты измерений УА в мКи/кг мо-



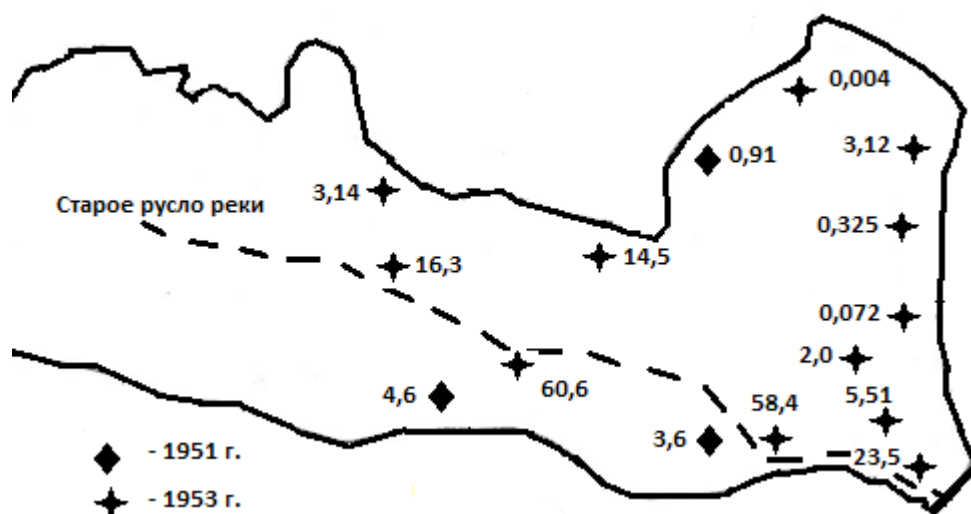


Рис. 6. Карта-схема отбора проб и результаты измерений удельной активности (мКи/кг мокрого веса) донных отложений в прибрежных районах Метлинского пруда в 1951 г. и в 1953 г.

крого веса (далее – мКи/кг) верхнего слоя ДО в прибрежной зоне акватории Метлинского пруда в 1951 г. [10] и в 1953 г. [11].

В 1951 г. пробы ДО [10] отбирались 17 октября непосредственно со дна водоёма (при спущенной воде) путём послойного отбора проб из трёх шурфов. В 1953 г. пробы ДО (38 кернов) отбирались с лодки. Анализ измерений позволил выявить ряд особенностей ПР УА ДО [11]:

- максимальное значение УА соответствует верхнему слою ДО, а уже на глубине 5 см снижается более чем в 50–100 раз;

- аномально высокие значения УА ДО (более чем в 20 раз выше средних) соответствуют положению старого русла р. Течи (обозначено пунктиром на рис. 6);

- в районе южной части с. Метлино старое русло реки непосредственно примыкает к правому берегу пруда, а значение УА ДО достигает максимального для прибрежной зоны значения  $A=58,4$  мКи/кг;

- в районе северного берега пруда среднее значение УА ДО составляло  $\sim 8,8$  (диапазон 3,14–14,5) мКи/кг, а на восточном наблюдались минимальные значения средней УА ДО  $\sim 1,2$  (0,072–3,25) мКи/кг.

Анализ данных рис. 6 показывает, что в разных районах акватории пруда значения УА ДО могут отличаться в десятки и сотни раз [11]. По мере движения водного потока вдоль водоёма В-4 происходит постепенное истощение (обеднение) содержания РН в воде за счёт сорбции на ДО и осаждения взвесей. Очевидно, что максимальные значения УА ДО должны наблюдаться в верхней и глубоководной частях водоёма и/или в районах, где происходит снижение скорости водного потока. И наоборот, на выходе воды из водоёма В-4 через водосбросное сооружение (в юго-восточной части водоёма у мельницы) происходит сужение сечения водного потока, что приводит к увеличению скорости воды и снижению скорости седиментации. Поэтому значения УА ДО в районе выпускного сооружения (лотка) плотины П-4 (юго-восточная часть водоёма) и соответствующие значения МЭД должны быть минимальны (в этой части акватории пробы не отбирались). В результате неоднородного рельефа дна водоёма, наличия заводей и прибрежной растительности в отдельных участках акватории могут образовываться застойные зоны с замедленной скоростью водообмена, что может приводить к изменению монотонного вида распределения

УА ДО, а значит и МЭД на урезе воды. Такая застойная зона находится в северо-восточной части пруда.

В 1950-х годах практически все берега водоёма В-4 были сильно заболочены и обильно заросли водной растительностью, за исключением небольшого участка на южном (правом) берегу вдоль с. Метлино (рис. 1, 5). К этой части акватории, где раньше проходило старое русло р. Течи, с берега примыкает "Метлинская горка" – участок с повышенными отметками рельефа (рис. 1). Дно пруда повторяет рельеф речной долины, а наибольшая глубина приурочена к бывшему руслу р. Течи в юго-восточной части водоёма. Поэтому ширина оголённых ДО на правом берегу акватории в период промывки должна быть минимальной, не более 50–100 м.

Среднее значение УА ДО на юге прибрежной зоны по состоянию на 1953 г. примем 60 мКи/кг (рис. 6), значение поверхностной плотности ДО для слоя высотой 0,025 м – 25 кг/м<sup>2</sup> [3], а долю  $\gamma$ -излучающих нуклидов в суммарной активности ДО – 0,5 [3]. Тогда поверхностная плотность оголённых ДО для  $\gamma$ -излучающих РН в 1953 г. будет  $\sigma_{1953} \approx 28$  ГБк/м<sup>2</sup>, а в августе 1951 г. (с учётом эффективного периода полураспада 220 сут) –  $\sigma_{1951} \approx 250$  ГБк/м<sup>2</sup>. Если ширину оголённых ДО в августе 1951 г. принять  $\Delta W = 2$  м, то линейная плотность активности будет равна  $\sim 0,50$  ТБк/м.

После восстановления 11.08.1951 плотины П-3 началось заполнение водоёма В-3 водой, которое продолжалось несколько суток. При этом поступление воды в водоём В-4 резко сократилось, что привело к понижению уровня воды и частичному оголению ДО. В этот период времени на середине водоёма В-4 на высоте 0,5 м над поверхностью воды мощность дозы была равна 50 мкР/с, ближе к берегу – 300 мкР/с, у самого берега МЭД достигала 1500 мкР/с, а на огородах села, расположенных вдоль пруда, изменялась от 100 до 2000 мкР/с [4, 8]. В с. Метлино на расстоянии 5 м от берега МЭД составляла  $P(R=5 \text{ м}) = 100$  мкР/с, на расстоянии 100 м –  $P(R=100 \text{ м})$  изменялась от 10 до 30 (среднее 20) мкР/с, а на расстоянии 300 м –  $P(R=300 \text{ м})$  изменялась от 4 до 7 (5,5) мкР/с [4, 8]. Используем эти результаты для независимой оценки значения эффективной

удельной (на единицу длины береговой полосы в приближении ЛИ) активности  $\gamma$ -излучающих нуклидов  $A_L^{\text{eff}}$  по формуле

$$A_L^{\text{eff}} = P(R) / P_{\text{Line}}(R). \quad (10)$$

Значения  $P_{\text{Line}}(R)$  приведены в табл. 1 для  $A_L = 1$  Бк/м постоянной по всей длине бесконечного ЛИ. Определённое по уравнению (10) значение названо "эффективным", поскольку оно является "усреднённым" некоторым образом по длине ( $L$ ) и ширине ( $\Delta W$ ) реальной береговой полосы с различным уровнем загрязнения. Результаты измерения МЭД вблизи уреза воды (при  $R < 20$  м) следует признать мало представительными, поскольку на этом участке ПР наблюдается максимальный градиент МЭД (табл. 1), а измеренное значение МЭД определяется главным образом прямым (не рассеянным) излучением от береговой полосы и характеризуется радиационную обстановку только в непосредственной близости от точки измерений. При увеличении  $R$  возрастает и длина БП, по которой "проводится" усреднение. Использование приближения ЛИ означает, что ширина береговой полосы  $\Delta W$  должна быть пренебрежимо мала по сравнению с  $R$  ( $\Delta W \ll R$ ). Поэтому наиболее представительными следует считать результаты измерений МЭД, выполненные на достаточно большом удалении от береговой полосы. Расчёт по уравнению (10) показывает, что для  $P(R=100 \text{ м}) \approx 20$  мкР/с,  $A_L^{\text{eff}} \approx 0,27$  ТБк/м, а для  $P(R=300 \text{ м}) \approx 5,5$  мкР/с,  $A_L^{\text{eff}} \approx 1,1$  ТБк/м, при среднем значении 0,69 ТБк/м ( $6,9 \cdot 10^{11}$  Бк/м). Таким образом, значения поверхностной плотности активности ДО, определённые двумя независимыми способами (по УА ДО и по измерениям МЭД на берегу пруда), хорошо совпадают между собой, что подтверждает корректность всех расчётных оценок.

Если предположить, что ширина оголённых ДО на правом берегу в период "промывки" была  $\Delta W = 50$  м (при  $A_L^{\text{eff}} = 0,69$  ТБк/м), то значения МЭФФД на расстоянии 100 и 200 м от прямоугольного источника размером  $50 \times 400$  м будут  $P(R=100 \text{ м}) \sim 16$  мкЗв/с и ( $R=200 \text{ м}) \sim 3,6$  мкЗв/с, а значения накопленной дозы за 10 сут (при постоянном пребывании в одном месте) будет  $D(R=100 \text{ м}) \sim 14$  Зв и  $D(R=200 \text{ м}) \sim 3,1$  Зв.

### Анализ результатов ТЛД измерений

Для оценки накопленных доз внешнего облучения населения специалисты УНПЦ РМ используют различные методы ретроспективной дозиметрии, включая метод термолюминесцентной дозиметрии (ТЛД), основанный на определении накопленной дозы в кристаллах кварца. Такие кристаллы извлекались из кирпичей старых зданий, которые были построены ещё в 19 веке и располагались вблизи реки. Люминесцентные измерения, выполненные для проб кирпичей, отобранных из различных мест Метлинской мельницы, показали, что антропогенная поглощённая доза  $D_x$  накопленная в кирпичах с юго-западной стены здания (3–4 Гр), оказалась примерно в 3 раза больше, чем доза с северо-западной стены [9, 12] (рис. 7). Причём значения доз возрастают с высотой от поверхности земли.

Рассмотрим два элементарных параллельных потока  $\gamma$ -квантов с площадью поперечного сечения  $S_0$  каждый, направленные на здание мельницы. Пусть направление потоков образует с юго-западной стеной здания угол  $\Psi$ . Эти потоки проецируются на северо-западную стену здания пятном с площадью  $S_1$ , а на юго-западную стены здания – пятном с площадью  $S_2$ . При этом плотность энергии  $\gamma$ -квантов  $E_0$ , переносимая в единицу времени через сечение  $S_0$  в направлении перпендикулярном потоку, будет "размазана" по стенам обратно пропорционально площади  $S_1$  и  $S_2$ . Поверхностная плотность энергии, "падающей" на северо-западную стену, будет  $E_1 = E_0 \cdot S_0 / S_1$ , а на юго-западную стену –  $E_2 = E_0 \cdot S_0 / S_2$ . При прочих равных усло-

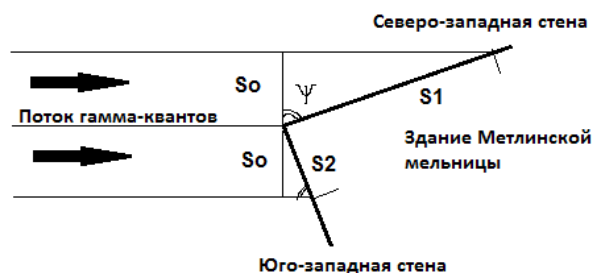


Рис. 7. Геометрия взаимодействия потока  $\gamma$ -излучения со стенами Метлинской мельницы

виях, отношение скорости поглощения энергии  $\gamma$ -квантов в кирпичах юго-западной и северо-западной стенах здания, а значит и отношение соответствующих значений поглощённой дозы –  $(D_2/D_1)$ , будет равно  $D_2/D_1 = S_1/S_2$ .

С другой стороны, если  $D_2/D_1 = 3$ , то можно записать:  $\sin \Psi = S_0/S_2$ ,  $\cos \Psi = S_0/S_1$ ,  $\tan \Psi = S_1/S_2 \approx 3$ , а угол  $\Psi \approx 72^\circ$ . Полученное значение угла  $\Psi$  определяет направление, где располагался основной (наиболее мощный) источник  $\gamma$ -излучения. Как и следовало ожидать, такой источник располагался на южном берегу водоёма В-4 (между точками "А" и "М"), в западном направлении на расстоянии ~100–150 м от мельницы (участок "Г"). Ранее уже отмечалось, что в этом районе старое русло р. Течи непосредственно прилегало к южному берегу, а по результатам обследования донных отложений в 1953 г., значения УА ДО были максимальными (рис. 5 и 6). На восточном берегу водоёма значения МЭД и УА ДО были всегда минимальными. Все остальные береговые полосы располагались далеко от мельницы, и их излучение не могло существенным образом повлиять на поглощённую дозу. После сооружения (реконструкции) в 1956 г. новой плотины (П-4), береговая линия в районе "Г" и прилегающие территории были отсыпаны чистым грунтом, а уровень воды в водоёме подняли более чем на 1 м.

Продemonстрируем возможную последовательность оценки дозы внешнего облучения для жителей с. Метлино на основе результатов ТЛД.

1. Расчёты пространственного распределения накопленной дозы проведём в декартовой системе координат  $(x, y)$ . За начало системы координат  $(0, 0)$  примем юго-западную стену мельницы (где отбирались пробы кирпичей для ТЛД), ось абсцисс направим вдоль южного берега водоёма (на запад), а ось ординат направим на юг. Для простоты и наглядности прямоугольный источник  $(50 \times 400 \text{ м})$  заменим на линейный источник  $\gamma$ -излучения длиной 400 м с постоянной по длине активностью расположим вдоль южного берега водоёма (ось  $x$ ) на расстоянии 100 м от мельницы. В табл. 4 приведены результаты расчётов, нормированные на 1,0 в месте расположения точки отбора проб кирпичей.

Таблица 4

Результаты расчётов относительного пространственного распределения накопленной дозы в южной части с. Метлино (нормировано на 1,0 в точке начала координат)

Расстояние от южного берега на юг (ось y), м	R, м	Расстояние от мельницы вдоль южного берега на запад (ось x), м				
		—	0	100	200	300
—	—	—	Граница источника			
0	—	—	1,0	—	—	—
50	село Метлино	—	0,85	5,8	10,8	11,4
100		—	0,58	2,0	3,4	3,7
200		—	0,22	0,47	0,72	0,80
300		—	0,074	0,13	0,18	0,22

2. Поглощённая антропогенная доза в кирпиче (на глубине 10 мм) юго-западной стены Метлинской мельницы, накопленная после 1949 г.  $D_x = 3,5$  Гр. Предположим, что накопленная техногенная доза в кирпиче за период после 1956 г. составила 0,5 Гр. Тогда доза на поверхности кирпича за период 1949–1956 гг. с учётом экранировки потока кирпичом (15 %) и при перпендикулярном падении потока на стену будет  $D_{x0} = (3,5 - 0,5) \cdot 1,15 / \sin \Psi = 3,6$  Гр.

3. Значение дозы в точке "I" с координатами (300, 200) м при постоянном (1949–1956) пребывании и с учётом сезонных колебаний (экранировка снегом, изменение уровня воды и др.) можно оценить  $D_1 = D_{x0} \cdot 0,80 = 2,9$  Гр.

4. Полученное значение дозы в точке "I" на основе ТЛД измерений (2,9 Гр) хорошо совпадает с соответствующей оценкой, полученной при остром облучении за 10 сут в период промывки водоёмов (3,1 Гр).

5. Значение накопленной дозы внешнего облучения для жителей с. Метлино (южная часть села, западнее мельницы) может изменяться на два порядка величины: от ~0,27 Гр в точке с координатами (0, 300) м до ~13 Гр в точке (300, 100) м.

#### Анализ результатов ЭПР измерений

Другим методом ретроспективной дозиметрии, используемым в УНПЦ РМ, является

метод электронного парамагнитного резонанса (ЭПР), который позволяет оценить индивидуальную (персональную) поглощённую дозу в эмали зубов [1]. В с. Метлино, где проживало 1300 жителей, было найдено 11 доноров зубов (зубы удалены по медицинским показаниям). Среднее значение поглощённой дозы по ЭПР измерениям для жителей с. Метлино оценено в 0,55 Гр, при максимальном значении 2,4 Гр [1]. Полученные выше результаты не противоречат ЭПР измерениям, но малый объём выборки (менее 0,1 %) не позволяет получить надёжные данные о частотном распределении и среднем значении накопленных доз.

Приведённые расчётные оценки предназначены главным образом для демонстрации возможностей и сущности предложенного методического подхода. Основной источник неопределённости в оценке доз связан с оценкой параметров "линейного источника" (в районе точки "I"). Можно предполагать, что существенно уточнить параметры этого источника можно будет путём верификации расчётных результатов по экспериментальным данным ТЛД измерений в пробах кирпичей мельницы и церкви, отобранных на разных высотах с использованием трёхмерной аналитической модели точечного источника, (учитывающей вертикальное распределение МЭД).

#### ВЫВОДЫ

1. Предложен и на примере с. Метлино апробирован новый методический подход к ретроспективной оценке доз внешнего облучения жителей р. Течи.

2. Показано, что основное внешнее радиационное воздействие произошло с 13 по 22 октября 1951 г. в период "промывки" прудов-отстойников.

3. Полученные с использованием предложенного подхода предварительные оценки доз внешнего облучения жителей с. Метлино позволяют предполагать, что для значительной части населения внешнее радиационное воздействие носило не пролонгированный, а острый характер.

4. Основная неопределённость в оценке доз связана с неопределённостью параметров "линейного источника"  $\gamma$ -излучения на южном



берегу пруда. Можно полагать, что существенно уточнить параметры этого источника можно будет путём создания трёхмерной аналитической модели точечного источника (учитывающей вертикальное распределение МЭД) и последующей верификации расчётных результатов от реального источника по экспериментальным данным ТЛД в пробах кирпичей мельницы и церкви, отобранных на разных высотах.

5. Предложенный подход позволяет получить пространственное распределение накопленных доз внешнего облучения на территории с. Метлино, что, в свою очередь, позволит существенно уточнить значения радиационных рисков.

6. В нижней части р. Течи имелось ещё 6 проточных прудов и плотин в населённых пунктах Муслумово, Русская Теча, Бугаево, Бисерово, Першино, Ключи. Каждая плотина позволяла накапливать объём воды, равный суточному стоку реки. Собранная вода использовалась для приведения в движение жерновов мельниц и маломощных колхозных электростанций. Ежедневный сброс воды (обычно вечером) приводил к оголению ДО в пруду и увеличению МЭД в прибрежной зоне, что необходимо учитывать при оценке накопленной дозы внешнего облучения.

*Авторы благодарят сотрудников ИБРАЭ РАН за любезно предоставленные результаты расчётов параметров рассеянного в атмосфере  $\gamma$ -излучения от наземного точечного источника.*

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Последствия радиоактивного загрязнения реки Течи / Под редакцией А.В. Аклеева. – Челябинск: "Книга", 2016. – 400 с.
2. Мокров Ю.Г. Реконструкция и прогноз радиоактивного загрязнения реки Течи. Ч. I. Роль взвешенных частиц в процессе формирования радиоактивного загрязнения реки Течи в 1949–1951 гг. // Библиотека журнала "Вопросы радиац. безопасности" № 1. – Озёрск, 2002. – 176 с.
3. Мокров Ю.Г. Реконструкция и прогноз радиоактивного загрязнения реки Течи. Ч. II. Реконструкция радиационной обстановки и оценка дозы облучения населения прибрежных районов р. Течи за период 1949–1954 гг. – Озёрск: РИЦ ВРБ, 2003. – 110 с.
4. Александров А.П., Мишенков Г.В., Тарасенко Н.Ю. и др. Загрязнение территории, прилегающей к заводу им. Менделеева: Отчёт / Архив ПО "Маяк". – 1951.
5. Ильин Д.И. Миграция радиоактивных веществ из открытых водоёмов: дисс... д-ра техн. наук / Архив ПО "Маяк". – 1956. – 270 с.
6. Ратнер А.П., Перминов П.С., Артуллер О.Б., Блинчевский Р.К. О сбросе малоактивных растворов объекта "Б": Отчёт / Архив ФГУП "ПО "Маяк". – 1950.
7. Сеницын В.И. Исследование радиационных и структурных свойств водоёма Карачай: дисс... канд. техн. наук / Архив ПО "Маяк". – 1987. – 236 с.
8. Марей А.Н., Ильин Д.И., Кардеева А.А. Влияние промышленных стоков завода им. Менделеева, сбрасываемых в р. Течу, на санитарные условия жизни и здоровье населения прибрежных пунктов: Отчёт / Архив ФГУП "ПО "Маяк" (ЦНИЛ, ИБФ, Институт гигиены труда АМН СССР). – М., 1952. – 210 л.
9. Woda C., Hiller M., Ulanowski A. et al. Luminescence dosimetry for evaluation of the external exposure in Metlino, upper Techa River valley, due to the shore of the Metlinsky Pond: A feasibility study // J. of Environmental Radioactivity. – Apr 2020. – V. 214–215: 106152.
10. Ильин Д.И., Петрова А.И., Степанова Л.Г., Шаралапов В.И. О загрязнении инертными продуктами территории ГХЗ им. Менделеева: Отчёт за 4 квартал 1951 г. / ЦНИЛ; Архив ФГУП "ПО "Маяк", – 1951. – 29 л.
11. Изменение с расстоянием бета- и гамма-активности и донных отложений реки Течи: Отчёт / Архив ПО "Маяк". – 1953.
12. Jacob P., Goksu Y., Taranenko V. et al. On an evaluation of external dose values in the Techa River Dosimetry System (TRDS) 2000 // Radiat. Environ. Biophys. – 2003. – V. 42. – P. 169–174.



УДК 57.085.23

© 2021

**КИНЕТИКА ГИБЕЛИ И ВОССТАНОВЛЕНИЯ КЛЕТОК  
КОСТНОГО МОЗГА У МЫШЕЙ ДВУХ ЛИНИЙ С РАЗНОЙ  
РАДИОЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬЮ ПОСЛЕ ОСТРОГО  
γ-ОБЛУЧЕНИЯ**

*Н.И. Атаманюк<sup>1,2</sup>, Е.В. Стяжкина<sup>1,2</sup>, Н.А. Обвинцева<sup>1</sup>,  
Г.А. Тряпицына<sup>1,2</sup>, И.А. Шапошникова<sup>1</sup>, С.С. Андреев<sup>1</sup>,  
А.Е. Алдибекова<sup>1</sup>, А.А. Перетыкин<sup>1</sup>, Е.А. Пряхин<sup>1</sup>*

*<sup>1</sup>Россия, г. Челябинск, ФГБУН Уральский научно-практический центр  
радиационной медицины ФМБА России*

*<sup>2</sup>Россия, г. Челябинск, ФГБОУ ВО Челябинский государственный  
университет*

Определены закономерности зависимости показателей гемопоэтических стволовых клеток (ГСК) и выживаемости мышей линии C57Bl/6 с обычной радиочувствительностью и мышей линии NOD SCID с высокой радиочувствительностью от дозы внешнего острого γ-излучения. Выявлены два показателя, которые могут быть использованы для оценки радиочувствительности мышей: коэффициент, выражающий отношение доли ГСК (CD117<sup>+</sup> клеток) среди ядросодержащих клеток костного мозга на 14-е сутки по отношению к этому показателю на третьи сутки после облучения; коэффициент, выражающий отношение относительной интенсивности флюоресценции γH2AX (белок, участвующий в репарации двунитевых разрывов ДНК) в клетках костного мозга на 14-е сутки к данному параметру на третьи сутки. Эти коэффициенты статистически значимо зависят от дозы радиационного воздействия и имеют близкие значения при облучении в равноэффективных дозах у двух линий мышей, отличающихся по радиочувствительности. Высказано предположение, что эти показатели могут быть использованы для оценки радиочувствительности человека в модели ксенотрансплантации ГСК человека иммунодефицитным мышам.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ГЕМОПОЭТИЧЕСКИЕ СТВОЛОВЫЕ КЛЕТКИ, γH2AX, ПРЕДИКТОРЫ РАДИОЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ, ОСТРЫЙ ЛУЧЕВОЙ СИНДРОМ, МЫШИ NOD SCID, C57Bl/6

Важной задачей современной радиобиологии является поиск маркеров индивидуальной радиочувствительности для персонализации рисков, связанных с радиационным воздействием. Индивидуальная радиочувствительность может быть рассмотрена, по меньшей мере, с точки зрения трёх различных аспектов действия ионизирующего излучения у разных индивидов при облучении в одной дозе: 1) как вероятность выживания или гибели облучённого организма при остром радиационном синдроме; 2) как разная степень выраженности детерминированных тканевых реакций; 3) как разная вероятность развития неблаго-

приятных отдалённых последствий облучения, носящих стохастический характер [1, 2].

Для возможности индивидуально прогнозировать тяжесть детерминированных тканевых реакций необходимо определить биомаркеры радиационного воздействия для наиболее важных, критических органов и тканей, определяющих выраженность лучевых поражений и, при облучении в летальных дозах - вероятность гибели организма при радиационном воздействии.

Такие маркеры могут найти применение для минимизации острых тканевых реакций при планируемом повышенном облучении

персонала группы А, для сокращения неблагоприятных побочных эффектов при лучевой терапии, для отбора космонавтов для длительных космических миссий вне защитного действия магнитного поля земли.

Различают молекулярные, клеточные и тканевые биомаркеры радиочувствительности, причём нет непротиворечивых данных о связи молекулярных и клеточных маркеров с тканевыми реакциями [3, 4]. Для решения этой проблемы необходимо установить взаимосвязь молекулярных, клеточных, тканевых реакций и реакцией целого организма на радиационное воздействие.

Цель работы – установить количественную связь между дозой острого  $\gamma$ -облучения, выживаемостью животных (вероятностью гибели от костномозговой формы острого лучевого синдрома) и показателями, характеризующими уровень повреждения и репопуляции гемопоэтических стволовых клеток (ГСК) в костном мозге в модели лабораторных животных (мыши) на примере двух линий мышей с разной радиочувствительностью.

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Условия содержания и процедура эксперимента соответствовали общим правилам работ с использованием экспериментальных животных [5]. При проведении исследований соблюдались правила гуманного обращения с экспериментальными животными в соответствии с "Правилами проведения работ с использованием экспериментальных животных", утверждёнными приказом Минздрава СССР (Приложение к приказу Министерства здравоохранения СССР от 12.08.1977 № 775) и стандартами Этического комитета ФГБУН УНПЦ РМ.

**Облучение животных.** Острое внешнее  $\gamma$ -облучение экспериментальных животных проводили на исследовательской радиобиологической  $\gamma$ -установке ИГУР-М ( $^{137}\text{Cs}$ -источники, мощность дозы 0,91 Гр/мин, неравномерность  $\gamma$ -поля в рабочем пространстве не более 10 %). Мышей линии C57Bl/6 облучали в дозах 5,5 Гр, 6,0 Гр и 6,6 Гр, что соответствует, согласно проведённым предварительно экспериментам,  $\text{LD}_{16/30}$ ,  $\text{LD}_{50/30}$  и  $\text{LD}_{84/30}$  для этой линии

животных. Мышей линии NOD SCID облучали в дозе 3,5 Гр, что соответствует  $\text{LD}_{50/30}$  для этой линии мышей, согласно собственным экспериментам. В каждой дозовой группе было по 20 мышей, самцы в возрасте 10–14 недель.

**Содержание ГСК в костном мозге животных.** Анализировали ГСК в костном мозге мышей методом проточной цитометрии на третьей сутки после облучения (период максимального опустошения костного мозга) и на 14-е сутки (период максимального напряжения восстановительных процессов), а также без облучения.

В соответствующий срок после облучения животных умерщвляли путём дислокации шейных позвонков, выделяли костный мозг из двух бедренных костей в 1 мл физиологического раствора. Часть полученной суспензии использовали для окраски ядросодержащих клеток и подсчёта числа ГСК. Суспензию клеток разводили в фосфатно-солевом буфере для окрашивания Stain Buffer (BD Pharmingen), добавляли блокаторы Fc-рецепторов Mouse BD Fc Block (BD Biosciences), окрашивали клетки антителами анти-CD45-PE и анти-CD117-APC (BD Pharmingen). Для определения жизнеспособности клеток использовали нуклеиновый краситель 7-AAD (BD Pharmingen), подсчитывали только живые клетки. Эритроциты лизировали забуференным раствором хлорида аммония. Анализ проводили на цитометре Accuri C6 в стандартной оптической конфигурации. Определяли количество  $\text{CD45}^+\text{CD117}^-$  и  $\text{CD45}^+\text{CD117}^+$  клеток в 1 мл суспензии (т.е. на одно бедро), а также долю  $\text{CD45}^+\text{CD117}^+$  клеток от всех  $\text{CD45}^+$  клеток.

**Определение интенсивности флуоресценции белка  $\gamma\text{H2AX}$ .** В суспензии клеток костного мозга лизировали эритроциты забуференным раствором хлорида аммония, затем клетки фиксировали в растворе 4 % параформальдегида и готовили к окрашиванию внутриклеточных антигенов с помощью набора BD Cytotfix/Cytoperm Fixation/Permeabilization Kit (BD Biosciences). Окраску и анализ зафиксированных клеток проводили в течение 72 ч после фиксации.

Для выявления остаточного уровня флуоресценции фокусов  $\gamma\text{H2AX}$  суспензию окрашивали антителами анти-CD45-PE и 7-AAD

(BD Pharmingen) для отделения исследуемой популяции клеток от эритроидных клеток и клеток костномозговой стромы, а также антителами AlexaFluor 647 Mouse anti-H2AX (pS139, клон N1-431) (BD Pharmingen) для измерения уровня флюоресценции фокусов  $\gamma$ H2AX в выделенной популяции клеток. Мерой количества фокусов  $\gamma$ H2AX служило медианное значение флюоресценции антител AlexaFluor 647 Mouse anti-H2AX. Для стандартизации показателей интенсивности флюоресценции к каждой пробе добавляли суспензию бусин High Control Beads (TruCount) с постоянным показателем флюоресценции.

Для выявления зависимости уровня интенсивности флюоресценции  $\gamma$ H2AX от поглощённой дозы использовали показатель относительной интенсивности флюоресценции, равный отношению значения флюоресценции  $\gamma$ H2AX после облучения к эндогенному, фоновому уровню.

**Статистический анализ.** Для сравнения динамики изменения показателей количества  $CD45^+CD117^+$  клеток в костном мозге, доли  $CD45^+CD117^+$  клеток и относительной интенсивности флюоресценции  $\gamma$ H2AX в разные сроки после облучения при облучении в разных дозах для данных показателей рассчитывали коэффициент, равный отношению значения

показателя на третьи сутки после облучения к значению на 14-е сутки после облучения (коэффициент 14/3).

Все выборки данных имели распределение частот, статистически значимо не отличавшееся от нормального по критерию Колмогорова-Смирнова. Для характеристики анализируемых показателей рассчитывали среднее, стандартную ошибку. Проводили регрессионный анализ для выявления зависимости от дозы острого облучения. Сравнение проводили с применением t-критерия Стьюдента. Статистически значимыми принимали отличия при вероятности 0-гипотезы  $p < 0,05$ .

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

### *Содержание ГСК в костном мозге облучённых животных*

Количество ГСК, определяемых как  $CD45^+CD117^+$  клетки, у мышей линий C57Bl/6 и NOD SCID после облучения в разных дозах приведено в табл. 1.

Облучение в дозах  $LD_{16/30}$ – $LD_{84/30}$  приводит к многократному снижению количества ГСК. На третьи сутки после облучения у мышей C57Bl/6 количество ГСК упало с  $196 \pm 14$  тыс. кл./бедро до  $15 \pm 4$  тыс. кл./бедро

Таблица 1

Количество  $CD45^+CD117^+$  клеток в костном мозге мышей после облучения, тыс. кл./бедро

Доза	мыши C57Bl/6			мыши NOD SCID		
	3-и сутки	14-е сутки	коэф-т 14/3	3-и сутки	14-е сутки	коэф-т 14/3
0	$196 \pm 14$	–	–	$770 \pm 90$	–	–
$LD_{16}$	$15 \pm 4$ * $t=12,13$ ; $p < 0,001$ ** $t=2,32$ ; $p=0,036$	$220 \pm 110$	$15 \pm 8$	–	–	–
$LD_{50}$	$14 \pm 3$ * $t=12,45$ ; $p < 0,001$ ** $t=3,15$ ; $p=0,007$	$240 \pm 90$ *** $t=2,37$ ; $p=0,03$	$17 \pm 7$	$9 \pm 2$ * $t=8,44$ ; $p < 0,001$	$80 \pm 30$ * $t=7,18$ ; $p < 0,001$ *** $t=2,24$ ; $p=0,04$	$9 \pm 4$
$LD_{84}$	$5 \pm 1$ * $t=13,22$ ; $p < 0,001$	$140 \pm 60$ *** $t=2,28$ ; $p=0,04$	$29 \pm 15$	–	–	–

Примечание: \* Статистически значимые отличия от необлучённого контроля; \*\* статистически значимые отличия от группы  $LD_{84/30}$  на том же сроке после облучения; \*\*\* статистически значимые отличия от показателя на третьи сутки после облучения в той же дозе.

при дозе ЛД<sub>16/30</sub>, в дозе ЛД<sub>84/30</sub> снижение было статистически значимо более выраженным, чем при облучении в меньших дозах – до 5±1 тыс. кл./бедро (табл. 1).

У мышей линии NOD SCID этот показатель без облучения был выше, чем у линии C57Bl/6, 770±90 тыс. кл./бедро, что вероятно связано с особенностями их кроветворения, нарушенного из-за мутации scid. После облучения в дозе ЛД<sub>50/30</sub> количество ГСК у мышей NOD SCID статистически значимо сокращалось до 9±2 тыс. кл./бедро.

На 14-е сутки количество CD45<sup>+</sup>CD117<sup>+</sup> клеток у облучённых мышей C57Bl/6 возвращалось к исходному уровню (не отмечено статистически значимых отличий от необлучённого контроля), однако вариации этого показателя у облучённых животных были существенно больше, чем у необлучённых мышей. У мышей NOD SCID, облучённых в дозе ЛД<sub>50/30</sub>, восстановления до исходного уровня на 14-е сутки не произошло, количество ГСК составляло 80±30 тыс. кл./бедро, что ниже исходного уровня ( $t=7,18$ ;  $p<0,001$ ), но выше, чем на третьи сутки после облучения ( $t=2,24$ ;  $p=0,04$ ).

Важно отметить, что на третьи сутки после облучения наблюдалось дозозависимое снижение количества ГСК в костном мозге.

На 14-е сутки в связи с разной выраженностью процессов восстановления пула стволовых клеток в костном мозге у облучённых мышей не было выявлено чёткой зависимости этого показателя от дозы. Отмечено, что с ростом дозы  $\gamma$ -облучения увеличивается коэффициент, равный отношению количества ГСК на 14-е сутки к количеству ГСК на третьи сутки после облучения (коэффициент изменения количества ГСК 14/3), однако для разных доз эти отличия были статистически не значимыми. Данный коэффициент у мышей NOD SCID после облучения в дозе ЛД<sub>50/30</sub> статистически значимо не отличался от аналогичного параметра для мышей C57Bl/6, облучённых в равноэффективной дозе ( $t=0,93$ ;  $p=0,37$ ).

При анализе данных о количестве CD45<sup>+</sup>CD117<sup>+</sup> клеток необходимо учитывать, что этот маркер экспрессируется не только на истинных полипотентных ГСК, но и на прогениторных клетках, способных к длительной репопуляции, и по оценкам исследователей, истинные ГСК составляют порядка 10 % от всех CD117<sup>+</sup> клеток [6].

В табл. 2 указано относительное количество CD45<sup>+</sup>CD117<sup>+</sup> клеток, выраженное как доля от всего количества CD45<sup>+</sup> клеток костного мозга мышей.

Таблица 2

Относительное содержание CD45<sup>+</sup>CD117<sup>+</sup> клеток по отношению к CD45<sup>+</sup> клеткам в костном мозге мышей после облучения, %

Доза	мыши C57Bl/6			мыши NOD SCID		
	3-и сутки	14-е сутки	коэф-т 14/3	3-и сутки	14-е сутки	коэф-т 14/3
0	0,86±0,05	–	–	5,1±0,4	–	–
ЛД <sub>16</sub>	1,1±0,36	3,72±0,71 * $t=4,03$ ; $p=0,001$ *** $t=3,3$ ; $p=0,005$	3,4±1,3	–	–	–
ЛД <sub>50</sub>	0,57±0,07 * $t=3,31$ ; $p=0,005$ ** $t=2,85$ ; $p=0,013$	5,34±0,96 * $t=4,65$ ; $p<0,001$ *** $t=4,95$ ; $p<0,001$	9,4±2,1	0,83±0,13 * $t=11,25$ ; $p<0,001$	11,4±2,6 * $t=2,38$ ; $p=0,03$ *** $t=4,04$ ; $p=0,001$	14±4
ЛД <sub>84</sub>	0,33±0,04 * $t=8,05$ ; $p<0,001$	6,2±1,56 * $t=3,42$ ; $p=0,004$ *** $t=3,77$ ; $p=0,002$	19±5	–	–	–

Примечание: \* Статистически значимые отличия от необлучённого контроля; \*\* статистически значимые отличия от группы ЛД<sub>84/30</sub> на том же сроке после облучения; \*\*\* статистически значимые отличия от показателя на третьи сутки после облучения в той же дозе.

Без облучения у мышей C57Bl/6  $CD45^+CD117^+$  клетки составляют  $0,86 \pm 0,05$  % от всех  $CD45^+$  клеток, а у мышей линии NOD SCID –  $5,1 \pm 0,4$  %. На третьи сутки после облучения в дозе  $LD_{16/30}$  не отмечено статистически значимых отличий этого показателя от контроля, при больших дозах происходило значимое снижение доли  $CD45^+CD117^+$  клеток от исходного уровня в обеих линиях мышей.

На 14-е сутки относительное количество  $CD45^+CD117^+$  клеток увеличилось и превысило контрольные уровни, для всех облучённых групп отличия были статистически значимыми как при сравнении с контролем, так и при сравнении с данным показателем на третьи сутки после облучения.

Важно отметить, что на третьи сутки после облучения регистрировалось дозозависимое снижение доли  $CD45^+CD117^+$  в костном мозге (рис. 1). На 14-е сутки после облучения доля  $CD45^+CD117^+$  клеток в костном мозге у облучённых мышей увеличивалась с повышением дозы  $\gamma$ -облучения (рис. 2).

Коэффициент, равный отношению доли ГСК от всех  $CD45^+$  клеток на 14-е сутки к доле ГСК от всех  $CD45^+$  клеток на третьи сутки после облучения, вероятно, наиболее точно отражает дозозависимые процессы поражения и последующего восстановления пула стволовых клеток в костном мозге мышей (коэффициент изменения доли  $CD45^+CD117^+$  клеток 14/3). Коэффициент изменения доли  $CD45^+CD117^+$  клеток 14/3 существенно различался в экспериментальных группах. У мышей C57Bl/6 при облучении в дозе  $LD_{16/30}$  данный коэффициент имел статистически значимые отличия от этого показателя при облучении в дозе  $LD_{50/30}$  ( $t=2,45$ ;  $p=0,03$ ) и при облучении в дозе  $LD_{84/30}$  ( $t=2,82$ ;  $p=0,01$ ), хотя при сравнении групп  $LD_{50/30}$  и  $LD_{84/30}$  он не достигал статистически значимых отличий ( $t=1,67$ ;  $p=0,12$ ).

На рис. 3 приведена дозовая зависимость коэффициента изменения доли  $CD45^+CD117^+$  клеток 14/3.

Была выявлена чёткая зависимость коэффициента изменения доли  $CD45^+CD117^+$  клеток 14/3 от дозы и, соответственно, от вероятности гибели мышей C57Bl/6 ( $R^2=0,99$ ;  $p=0,05$ ).

Для мышей линии NOD SCID облучение проводили в дозе, равной  $LD_{50/30}$ , при этом

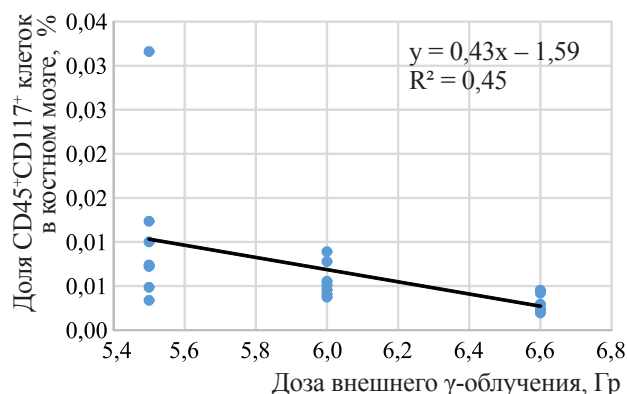


Рис. 1. Зависимость от дозы относительной доли  $CD45^+CD117^+$  клеток в костном мозге мышей, третьи сутки после облучения

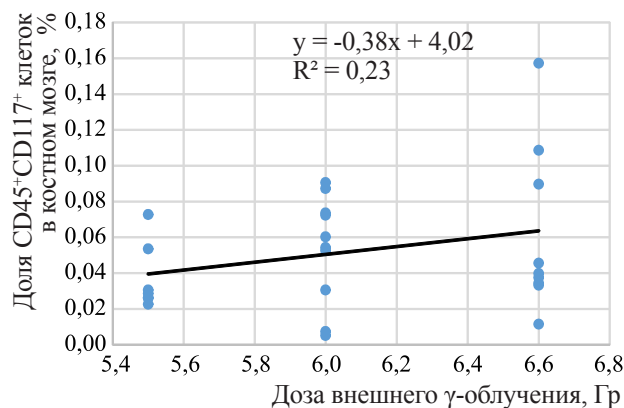


Рис. 2. Зависимость от дозы относительной доли  $CD45^+CD117^+$  клеток в костном мозге мышей, 14-е сутки после облучения

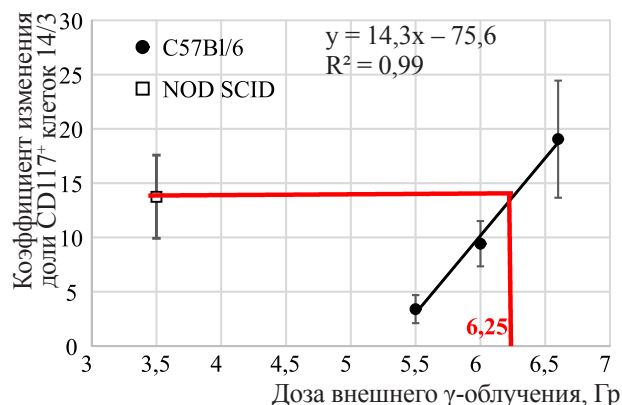


Рис. 3. Зависимость от дозы коэффициента изменения доли  $CD45^+CD117^+$  клеток 14/3



видно, что при облучении в разных, но равноэффективных по критерию выживаемости дозах, коэффициент изменения доли  $CD117^+$  клеток 14/3 для более радиочувствительных животных NOD SCID имел значение, промежуточное между дозами  $LD_{50/30}$  и  $LD_{84/30}$  для линии C57Bl/6. Нет значимых отличий этого коэффициента при облучении в равноэффективной дозе  $LD_{50/30}$  мышей линии C57Bl/6 и NOD SCID ( $t=0,99$ ;  $p=0,34$ ). То есть по данному критерию эффект облучения мышей NOD SCID в дозе 3,5 Гр соответствовал эффекту облучения мышей C57Bl/6 в дозе 6,25 Гр.

#### **Уровни флуоресценции фокусов $\gamma H2AX$ в клетках костного мозга через 3 и 14 суток после облучения в разных дозах у мышей**

Интенсивность флуоресценции фокусов  $\gamma H2AX$  в  $CD45^+$  клетках костного мозга в исследуемые периоды после облучения в разных дозах представлена в табл. 3. Повышенный уровень фокусов  $\gamma H2AX$  сохраняется после облучения не менее чем в течение 14 суток, и вероятно, отражает не только радиационно-индуцированные двунитевые разрывы ДНК, но и внутренние особенности регенерирующей после облучения популяции кариоцитов на клеточном уровне.

Согласно подходу, предложенному в некоторых литературных источниках [7, 8], уровень фокусов  $\gamma H2AX$  характеризовали как относительную интенсивность флуоресценции  $\gamma H2AX$  по отношению к фоновому уровню данного показателя. При облучении в дозе 5,5 Гр ( $LD_{16/30}$ ) относительная интенсивность флуоресценции  $\gamma H2AX$  была меньше единицы (меньше фоновой интенсивности флуоресценции), при облучении в дозах 6,0 и 6,6 Гр отмечено повышение относительной интенсивности флуоресценции  $\gamma H2AX$ . Описана зависимость относительной интенсивности флуоресценции  $\gamma H2AX$  от дозы внешнего  $\gamma$ -облучения ( $R^2=0,45$ ;  $F=17,04$ ;  $p=0,00048$ ) (рис. 4).

Интересно отметить, что и на 14-е сутки после облучения интенсивность флуоресценции  $\gamma H2AX$  оставалась повышенной по сравнению с фоновыми значениями. Но для мышей C57Bl/6 на 14-е сутки была отмечена обратная зависимость относительной интенсивности

флуоресценции  $\gamma H2AX$  от дозы внешнего  $\gamma$ -облучения ( $R^2=0,23$ ;  $F=5,4$ ;  $p=0,03$ ) (рис. 5).

Поскольку на третьи и на 14-е сутки после облучения отмечены разные тенденции изменения относительной интенсивности флуоресценции  $\gamma H2AX$  с увеличением дозы внешнего  $\gamma$ -облучения (увеличение с ростом дозы на третьи сутки и снижение с ростом дозы на 14-е сутки), для более детального исследования изменения интенсивности флуоресценции  $\gamma H2AX$  в клетках костного мозга после облучения в разных дозах рассчитали коэффициент, равный отношению интенсивности флуорес-

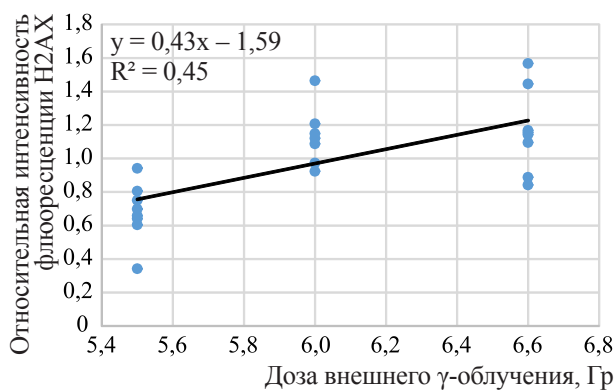


Рис. 4. Зависимость от дозы относительной интенсивности флуоресценции  $\gamma H2AX$  в  $CD45^+$  клетках костного мозга мышей C57Bl/6 на третьи сутки после облучения

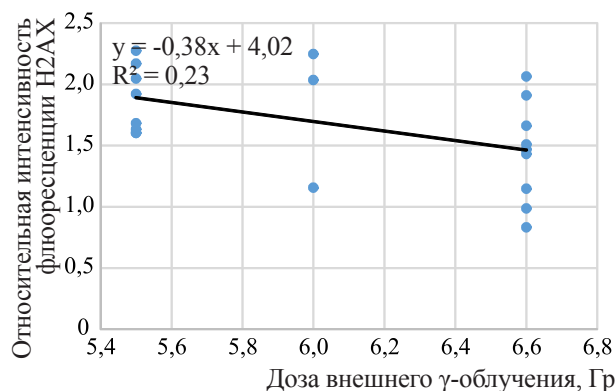


Рис. 5. Зависимость от дозы относительной интенсивности флуоресценции  $\gamma H2AX$  в  $CD45^+$  клетках костного мозга мышей C57Bl/6 на 14-е сутки после облучения

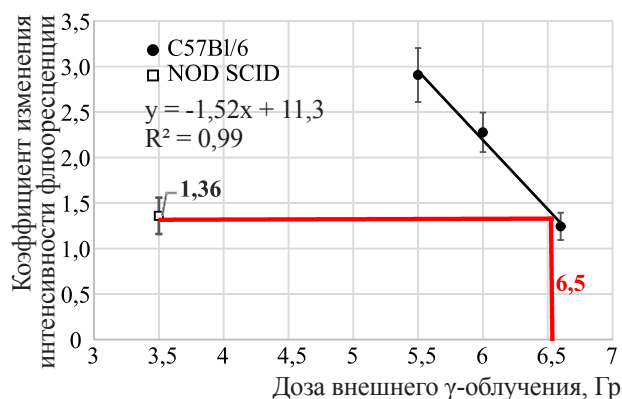


Рис. 6. Зависимость от дозы коэффициента изменения интенсивности флуоресценции  $\gamma$ H2AX на 14-е сутки по отношению к таковой на третьи сутки после облучения

ценции  $\gamma$ H2AX на 14-е сутки к интенсивности флуоресценции  $\gamma$ H2AX на третьи сутки после облучения (коэффициент изменения интенсивности флуоресценции  $\gamma$ H2AX 14/3). У мышей C57Bl/6 при облучении в дозе  $LD_{16/30}$  данный коэффициент имел статистически значимые отличия от этого показателя при облучении в дозе  $LD_{50/30}$  ( $t=2,43$ ;  $p=0,03$ ) и при облучении в дозе  $LD_{84/30}$  ( $t=3,02$ ;  $p=0,01$ ), хотя при сравнении групп  $LD_{50/30}$  и  $LD_{84/30}$  он не достигал статистически значимых отличий ( $t=1,77$ ;  $p=0,10$ ). Для данного коэффициента изменения интенсивности флуоресценции  $\gamma$ H2AX отмечена дозовая зависимость (рис. 6).

Для мышей линии NOD SCID облучение проводили только в дозе, равной  $LD_{50/30}$ , при этом интересно отметить, что при облучении в разных, но равноэффективных по критерию выживаемости дозах, коэффициент изменения интенсивности флуоресценции  $\gamma$ H2AX 14/3 для более радиочувствительных животных NOD SCID имел значение, промежуточное между дозами  $LD_{50/30}$  и  $LD_{84/30}$  для линии C57Bl/6. То есть по данному критерию эффект облучения мышей NOD SCID в дозе 3,5 Гр соответствовал эффекту облучения мышей C57Bl/6 в дозе 6,5 Гр.

## ОБСУЖДЕНИЕ

Возможность прогнозирования индивидуальной радиочувствительности является одной

из важных задач современной радиобиологии. При этом само понятие радиочувствительности может рассматриваться на разных уровнях [1, 2], и как радиочувствительность целого организма, определяемая как выживаемость или гибель организма после облучения, связанная с развитием детерминированных эффектов; и как радиочувствительность здоровых тканей, определяемая как различная склонность к развитию побочных реакций при лучевой терапии; и как радиочувствительность тканей как склонность к развитию радиационно-индуцированного рака или других стохастических эффектов; и как клеточная радиочувствительность, связанная с разной степенью выраженности событий, регистрируемых на клеточном уровне, таких как повреждение ДНК.

Степень первоначальной реакции на повреждение, последующие реакции восстановления клеток, реакции на тканевом уровне и даже отдаленные эффекты облучения у разных людей различаются. Эти отличия типичны для нормального распределения, наблюдаемого для большинства биологических параметров [4]. Однако нет четких критериев для выявления повышенной или пониженной радиочувствительности. Только для острых и поздних клинических эффектов, наблюдаемых у пациентов с лучевой терапией, существуют четкие руководящие принципы для оценки степени нежелательной реакции, ведущие к количественной оценке тяжести реакции чувствительности [3, 4, 9].

Считается, что индивидуальная радиочувствительность определяется генетически и является неким "внутренним" генетическим признаком, определяющим те или иные особенности реакции клеток на ионизирующее излучение. В таком случае радиочувствительность отдельных клеток, выделенных от человека, должна коррелировать с радиочувствительностью целого организма. Однако, мелкомасштабные исследования с использованием функционального анализа отдельных клеток *in vitro* дают противоречивые результаты [10–13].

Выживание стволовых или коммитированных клеток, обеспечивающих восстановление гемопоэза после облучения, по-видимому, является лучшим критерием для оценки радиочувствительности и прогноза выживаемости

организма (при костномозговой форме острого лучевого синдрома) и развития детерминированных тканевых эффектов [3]. Непрерывный спектр значений, определяющих долю выживающих стволовых и коммитированных клеток, хорошо согласуется со спектром возможных клинических ответов на облучение [3]. Анализ данных литературы показывает, что количество и кинетика радиационно-индуцированной гибели и восстановления ГСК, а также глубина опустошения и успех восстановления костного мозга могут быть потенциальными предикторами радиочувствительности [14–20]. Существует связь между выжившим после облучения количеством стволовых клеток в критических системах и вероятностью выживания облучённого организма [15, 21–25]. Высказывалось предложение оценивать действие различных токсикантов именно по реакции стволовых клеток критических тканей: исследования стволовых клеток позволяют получить ценную информацию об истинных последствиях воздействия разных стрессовых факторов окружающей среды на человека в контролируемых условиях [26].

Молекулярными маркерами, связанными с индивидуальной радиочувствительностью, могут быть показатели эффективности репарации ДНК и контроля клеточного цикла, активности систем антиоксидантной защиты, вероятности апоптозной или иной гибели клеток [2–4]. Однако нет непротиворечивых данных о связи между молекулярными и тканевыми маркерами радиочувствительности.

В представленной работе был проведён поиск феноменологических особенностей, определяющих молекулярные, клеточные и тканевую реакции со стороны костного мозга на острое внешнее  $\gamma$ -облучение в среднелетальных дозах на примере двух линий мышей, отличающихся по радиочувствительности. Мыши линии NOD SCID характеризуются мутацией scid, нарушающей репарацию двунитевых разрывов ДНК и определяющей дефект функции иммунной системы, а также повышенную радиочувствительность этих животных ( $LD_{50/30}$  3,5 Гр по собственным данным). Мыши C57Bl/6 широко используются для биомедицинских исследований кроветворной и иммунной системы, для радиобиологических работ,

радиочувствительность этой линии характерна для мышей как для вида ( $LD_{50/30}$  6,0 Гр по собственным данным).

На клеточном уровне в качестве потенциального предиктора радиочувствительности оценивали выживаемость ГСК в критические сроки после облучения: на третьи сутки после облучения (период максимального опустошения костного мозга после острого облучения) и на 14-е сутки (в это время активно идут восстановительные процессы репопуляции костного мозга). На субклеточном уровне в качестве возможного маркера реакции на облучение выбран уровень флюоресценции белка  $\gamma$ H2AX, индикатор двунитевых разрывов ДНК, один из широко обсуждаемых молекулярных маркеров радиочувствительности [27–32]. Использовали три дозы острого  $\gamma$ -облучения, равные  $LD_{16/30}$ ,  $LD_{50/30}$ ,  $LD_{84/30}$  для опытных животных, чтобы связать полученные клеточные и субклеточные показатели с вероятностью выживаемости облучённых организмов.

Определение связи между молекулярными показателями, клеточными параметрами кроветворения с вероятностью гибели животных от костномозговой формы острой лучевой болезни необходимо для выбора показателей, перспективных с точки зрения возможности прогноза радиочувствительности организма по критериям выживаемости и развития детерминированных тканевых эффектов. Такие показатели потенциально могут быть использованы в дальнейшем при оценке реакции ГСК человека в модели ксенотрансплантации клеток человека иммунодефицитным мышам и их облучения *in vivo*. Эта технология позволит оценить выживаемость человеческих стволовых клеток, а также даст возможность измерить молекулярные маркеры радиационного воздействия в условиях *in vivo*, в организме мыши, что может быть использовано для предсказания радиочувствительности человека на организменном уровне.

В проведённом эксперименте установлены количественные связи между дозой острого  $\gamma$ -облучения и показателями ГСК у мышей: абсолютным и относительным количеством  $CD45^+CD117^+$  клеток в костном мозге. На третьи сутки после облучения количество ГСК резко снижается в зависимости от дозы

облучения. На 14-е сутки после облучения относительное содержание CD45<sup>+</sup>CD117<sup>+</sup> клеток дозозависимо повышается. Коэффициент изменения доли CD45<sup>+</sup>CD117<sup>+</sup> клеток на 14-е сутки по отношению к доле CD45<sup>+</sup>CD117<sup>+</sup> клеток на третьи сутки после облучения показал зависимость от дозы и может быть использован для оценки радиочувствительности мышей разных линий, поскольку при облучении в разных, но равноэффективных по критерию выживаемости дозах этот коэффициент для более радиочувствительных животных NOD SCID и мышей C57Bl/6 имел близкие значения.

Также было выявлено, что патофизиологические изменения в клетках облученного костного мозга проявляются в изменении интенсивности флюоресценции фокусов γH2AX. На третьи сутки после облучения регистрируется дозозависимое увеличение относительной интенсивности флюоресценции γH2AX. На 14-е сутки после облучения регистрируется дозозависимое снижение относительной интенсивности флюоресценции γH2AX. Рассчитанный коэффициент, выражающий изменение интенсивности флюоресценции γH2AX в клетках костного мозга на 14-е сутки по отношению к интенсивности флюоресценции γH2AX на третьи сутки, статистически значимо зависел от дозы радиационного воздействия для мышей C57Bl/6, и может быть использован для оценки радиочувствительности мышей разных линий, поскольку при облучении в разных, но равноэффективных по критерию выживаемости дозах этот коэффициент для более радиочувствительных животных NOD SCID и мышей C57Bl/6 имел близкие значения.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ дозовых зависимостей количества ГСК (CD117<sup>+</sup> клеток) в костном мозге у мышей C57Bl/6 и NOD SCID показал, что коэффициент изменения доли CD117<sup>+</sup> клеток в костном мозге на 14-е сутки по отношению к доле CD117<sup>+</sup> клеток на третьи сутки после облучения может быть использован для оценки радиочувствительности мышей разных линий.

Анализ дозовых зависимостей интенсивности флюоресценции γH2AX у мышей C57Bl/6 и NOD SCID показал, что коэффици-

ент изменения интенсивности флюоресценции γH2AX в клетках костного мозга на 14-е сутки к интенсивности флюоресценции γH2AX на третьи сутки, может быть использован для оценки радиочувствительности мышей разных линий.

Предполагается, что данные коэффициенты могут быть использованы как инструменты для прогноза индивидуальной радиочувствительности на организменном уровне по критериям выживаемости и развития детерминированных тканевых эффектов.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Хаитов Р.М., Аклеев А.В., Кофиади И.А. Индивидуальная радиочувствительность и иммунитет: национальное руководство. – Челябинск: Книга, 2018. – 216 с.
2. Human Radiosensitivity / Report of the independent Advisory Group on Ionising Radiation Documents of the Health Protection Agency. – London, 2013. – 164 p.
3. Ferlazzo M.L., Bourguignon M., Foray N. Functional assays for individual radiosensitivity: a critical review // *Seminars in Radiation Oncology*. – 2017. – V. 27(4). – P. 310–315. – doi:10.1016/j.semradonc.2017.04.003.
4. Radiation Protection N°171 Individual radiosensitivity / EU Scientific Seminar 2011. – Luxembourg: Publications Office of the European Union, 2012. – 71 p.
5. Директива 2010/63/EU Европейского парламента и совета европейского союза по охране животных, используемых в научных целях. СПб.: Rus-LASA "НП объединение специалистов по работе с лабораторными животными". Рабочая группа по переводам и изданию тематической литературы. – 2012. – 48 с.
6. Purton L.E., Scadden D.T. Limiting factors in murine hematopoietic stem cell assays // *Cell Stem Cell*. – 2007. – V. 1(3). – P. 263–270. – doi:10.1016/j.stem.2007.08.016.
7. Van Oorschot B., Hovingh S., Dekker A. et al. Predicting radiosensitivity with gamma-H2AX Foci assay after single high-dose-rate and pulsed dose-rate ionizing irradiation // *Radiation Research*. – 2016. – V. 185(2). – P. 190–198. – doi:10.1667/rr14098.1.
8. Rube C.E., Fricke A., Widmann T.A. et al. Accumulation of DNA damage in hematopoietic



- stem and progenitor cells during human aging // PLoS ON. – 2011. – V. 6(3). – e17487.
9. Effects of ionizing radiation on the immune system / UNSCEAR, 2009. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Report to the General Assembly. UN Publication Sales No. E.09.IX.5. – New York, USA, 2009.
10. Nuta O., Somaiah N., Boyle S. et al. Correlation between the radiation responses of fibroblasts cultured from individual patients and the risk of late reaction after breast radiotherapy // Cancer Lett. – 2016. – V. 374. – P. 324–330.
11. Lobachevsky P., Leong T., Daly P. Compromized DNA repair as a basis for identification of cancer radiotherapy patients with extreme radiosensitivity // Cancer Lett. – 2016. – V. 383. – P. 212–219.
12. Chua M., Somaiah N., Bourne S. et al. DNA double-strand break repair and induction of apoptosis in ex vivo irradiated blood lymphocytes in relation to late normal tissue reactions following breast radiotherapy // Radiat. Environ. Biophys. – 2014. – V. 53. – P. 355–364.
13. Brzozowska K., Pinkawa M., Eble M.J. et al. In vivo versus in vitro individual radiosensitivity analysed in healthy donors and in prostate cancer patients with and without severe side effects after radiotherapy // Int. J. Radiat. Biol. – 2012. – V. 88. – P. 405–413.
14. Flidner T.M., Graessle D., Paulsen C., Reimers K. Structure and function of bone marrow hemopoiesis: mechanisms of response to ionizing radiation exposure // Cancer Biotherapy & Radiopharmaceuticals. – 2002. – V. 17. – P. 405–426.
15. Ефимова Н.В., Шибкова Д.З. Модифицирующее действие радиационного фактора на стволовые кроветворные клетки экспериментальных животных: монография. – Челябинск: Изд-во Челяб. гос. пед. ун-та, 2007. – 201 с.
16. Flidner T.M., Graessle D.H., Meineke V., Dörr H. Pathophysiological principles underlying the blood cell concentration responses used to assess the severity of effect after accidental whole-body radiation exposure: an essential basis for an evidence-based clinical triage // Experimental Hematology. – 2007. – V. 35(4). – P. 8–16. – doi:org/10.1016/j.exphem.2007.01.006.
17. Swift M., Taketa S., Bond V. Regionally fractionated X-irradiation equivalent in dose to total-body exposure // Radiat. Research. – 1954. – V. 1(3). – P. 241–252. – doi:10.2307/3570369(1954).
18. Hanks G. In vivo migration of colony-forming units from shielded bone marrow in the irradiated mouse // Nature. – 1964. – V. 203. – P. 1393–1395. – doi:org/10.1038/2031393b0.
19. Croizat H., Frindel E., Tubiana M. The effect of partial body irradiation on haemopoietic stem cell migration // Cell Tissue Kinet. – 1980. – V. 13(3). – P. 319–325. – doi:10.1111/j.1365-2184.1980.tb00470.x.
20. Xu G., Wu H., Zhang J. et al. Metformin ameliorates ionizing irradiation-induced long-term hematopoietic stem cell injury in mice // Free Radical Biology and Medicine. – 2015. – V. 87. – P. 15–25.
21. Shao L., Luo Y., Zhou D. Hematopoietic stem cell injury induced by ionizing radiation // Antioxid Redox Signal. – 2014. – V. 20(9). – P. 1447–1462. – doi:10.1089/ars.2013.5635.
22. Flidner T.M., Tibken B., Hofer E.P., Paul W. Stem cell responses after radiation exposure: a key to the evaluation and prediction of its effects // Health Phys. – 1996. – V. 70(6). – P. 787–797.
23. Flidner T.M. The role of blood stem cells in hematopoietic cell renewal // Stem Cells. – 1998. – V. 16(1). – P. 13–29.
24. Van Bekkum D.W. Radiation sensitivity of the hemopoietic stem cell // Radiat. Res. – 1991. – V. 128(1). – P. 4–8.
25. Flidner T.M., Graessle D.H. Hematopoietic cell renewal systems: mechanisms of coping and failing after chronic exposure to ionizing radiation // Radiat. Environ. Biophys. – 2008. – V. 47. – P. 63–69. – doi:org/10.1007/s00411-007-0148-6.
26. Worley J.R., Parker G.C. Effects of environmental stressors on stem cells // World J. Stem Cells. – 2019. – V. 11(9). – P. 565–577. – doi:10.4252/wjsc.v11.i9.565.
27. Borràs M., Armengol G., De Cabo M. et al. Comparison of methods to quantify histone H2AX phosphorylation and its usefulness for prediction of radiosensitivity // International J. of Radiation Biology. – 2015. – V. 91. – P. 915–924.
28. Pernot E., Hall J., Baatout S. et al. Ionizing radiation biomarkers for potential use in epidemiological studies // Mutation Research/ Reviews in Mutation Research. – 2012. – V. 751. – P. 258–286.



29. Löbrich M., Shibata A., Beucher A. et al.  $\gamma$ H2AX foci analysis for monitoring DNA double-strand break repair: strengths, limitations and optimization // *Cell Cycle*. – 2010. – V. 9(4). – P. 662–669. – doi:10.4161/cc.9.4.10764.
30. Goodarzi A.A., Jeggo P.A. Irradiation induced foci (IRIF) as a biomarker for radiosensitivity // *Mutation Research/Fundamental and Molecular Mechanisms of Mutagenesis*. – 2012. – V. 736(1–2). – P. 39–47. – doi:10.1016/j.mrfmmm.2011.05.017.
31. Van Oorschot B., Hovingh S., Dekker A. et al. Predicting radiosensitivity with gamma-H2AX Foci assay after single high-dose-rate and pulsed dose-rate ionizing irradiation // *Radiation Research*. – 2016. – V. 185(2). – P. 190–198. – doi:10.1667/rr14098.1.
32. Werbrouck J., De Ruyck K., Beels L. et al. Prediction of late normal tissue complications in RT treated gynaecological cancer patients: potential of the gamma-H2AX foci assay and association with chromosomal radiosensitivity // *Oncol. Rep.* – 2010. – V. 23. – P. 571–578.

УДК 616.006.04+612.014.482

© 2021

## ОЦЕНКА КАНЦЕРОГЕННОГО РИСКА ЗЛОКАЧЕСТВЕННЫХ ОПУХОЛЕЙ ПИЩЕВАРИТЕЛЬНОЙ СИСТЕМЫ В КОГОРТЕ ВНУТРИУТРОБНО ОБЛУЧЁННЫХ ДЕТЕЙ

*Ю.В. Царёва, П.В. Окатенко*

*Россия, г. Озёрск, ФГУП Южно-Уральский институт биофизики ФМБА России*

Злокачественные новообразования пищеварительной системы одна из самых распространенных форм онкологических заболеваний в мире. Данные опухоли отличаются наиболее злокачественным течением, являясь причиной смерти в половине всех выявленных случаев онкологии. **Цель работы:** оценка канцерогенного риска по показателям заболеваемости и смертности злокачественными новообразованиями пищеварительной системы среди детей, облучённых внутриутробно в результате профессиональной деятельности их матерей, работавших на ПО "Маяк". **Материалы и методы.** Анализ проведён на когорте потомков 1949–1988 годов рождения, которая включает в себя 6244 ребёнка, из них 3587 детей подвергались внешнему  $\gamma$ -облучению во время внутриутробного развития. Проведен анализ структуры заболеваемости и смертности от злокачественных новообразований органов пищеварения, исследованы показатели заболеваемости и смертности среди основной и контрольной групп, рассчитан относительный риск и избыточный относительный риск по показателям заболеваемости и смертности от рака желудочно-кишечного тракта. Диапазон доз антенатального облучения составлял 0,03–916,1 мГр, со средним значением 57,6 мГр. Расчёты были проведены в соответствии с общепринятой практикой и с использованием компьютерной программы AMFIT программного обеспечения EPICURE. **Результаты.** Структура заболеваемости и смертности от злокачественных новообразований пищеварительного тракта в исследуемой когорте среди мужчин и женщин практически не различалась. Существенный вклад вносили рак желудка, рак ободочной кишки и рак прямой кишки. При анализе показателей заболеваемости и смертности внутри исследуемой когорты, было найдено превышение злокачественных новообразований органов пищеварения среди мужчин основной группы по сравнению с контрольной группой, что достигалось в основном за счёт достоверного увеличения опухолей желудка. У женщин контрольной группы заболеваемость раком желудка была достоверно выше, чем аналогичный показатель в основной группе. Было отмечено достоверное увеличение относительного риска смертности и избыточного относительного риска смертности в дозовой группе выше 95,0 мГр. **Заключение.** Данная когорта является одной из немногих когорт, на основе которой возможно оценить количественную роль внутриутробного воздействия радиационного излучения на риск заболеваемости и смертности от злокачественных новообразований различных локализаций, в т.ч. и от опухолей органов пищеварения.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ВНУТРИУТРОБНОЕ РАДИАЦИОННОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ, СТРУКТУРА ЗАБОЛЕВАЕМОСТИ И СМЕРТНОСТИ, ОТНОСИТЕЛЬНЫЙ РИСК, ИЗБЫТОЧНЫЙ ОТНОСИТЕЛЬНЫЙ РИСК, ПО "МАЯК"

Злокачественные новообразования (ЗНО) пищеварительной системы – одна из самых распространённых форм онкологических заболеваний в мире. Данные опухоли отличаются наиболее злокачественным течением, являясь причиной смерти в половине всех выявленных

случаев онкологии. Рак желудочно-кишечного тракта (ЖКТ) чаще всего представлен злокачественными новообразованиями желудка [1]. Заболеваемость опухолями желудка среди мужчин почти в два раза выше, чем у женщин. Также отмечается высокая смертность от рака

желудка – умирают около 80% от числа впервые выявленных больных [2–3].

Чаще причиной смерти является колоректальный рак. В целом данный рак занимает третье место по заболеваемости, но второе – по смертности. Ежегодно в мире регистрируются более 600 тысяч новых больных раком толстой кишки, половина из них умирает [4–5].

Достоверных данных о причинах возникновения опухолей пищеварительной системы нет, можно лишь строить предположения, основываясь на многолетних статистических данных. Это позволяет определить группы риска и назвать факторы, провоцирующие появление раковых клеток.

Считается, что основными причинами возникновения онкопатологии ЖКТ являются генетическая предрасположенность, плохо сбалансированное питание, гормональные сбои, вредные привычки (частое употребление даже малых доз алкоголя, курение), малоподвижный образ жизни и лишний вес, наличие патологии кишечника воспалительного характера, а также постоянные стрессовые ситуации [1, 4, 6–7].

При этом увеличение заболеваемости ЗНО пищеварительного тракта отмечается именно в странах с высоким экономическим ростом, в то время как смертность увеличивается в странах с низким уровнем дохода на душу населения [8–9].

Считается, что радиация является наиболее известной причиной заболеваемости и смертности от всех злокачественных новообразований. Оценка же последствий антенаталь-

ного облучения является одной из актуальных и сложных проблем радиационной медицины. В то же время, имеющиеся литературные данные по этой проблеме немногочисленны и в определенной мере противоречивы [10–13]. В последнее время опубликованы ряд статей, посвященных исследованию онкологической заболеваемости среди жителей г. Озёрска, подвергавшихся в детском возрасте техногенному облучению за счёт деятельности производственного объединения "Маяк" (ПО "Маяк") [14–17].

Целью настоящей работы является оценка канцерогенного риска по показателям заболеваемости и смертности от ЗНО пищеварительной системы среди детей, облучённых внутриутробно в результате профессиональной деятельности их матерей, работавших на ПО "Маяк".

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

### *Исследуемая когорта и сроки наблюдения*

Исследование проведено на основе Детского регистра, созданного и поддерживаемого в лаборатории эпидемиологии отдаленных последствий радиационного воздействия у персонала и населения ФГУП ЮУрИБФ [18], который включает в себя более 80 тыс. чел., рождённых в г. Озёрске или приехавших в него в детском возрасте. Для проведения исследования была сформирована когорта лиц 1949–1988 годов рождения, матери которых начали работать на ПО "Маяк" до рождения

Таблица 1

Характеристика когорты

Показатели	Пол	Основная группа	Контрольная группа	Всего
Число лиц	муж	1900 (53,0 %)	1332 (50,1 %)	3232 (51,8 %)
	жен	1687 (47,0 %)	1325 (49,9 %)	3012 (48,2 %)
	оба	3587	2657	6244
С установленным жизненным статусом	муж	1791 (94,3 %)	1260 (94,6 %)	3051 (94,4 %)
	жен	1569 (93,0 %)	1238 (93,4 %)	2807 (93,2 %)
	оба	3360 (93,7 %)	2498 (94,0 %)	5858 (93,8 %)
Число человеко-лет наблюдения	муж	92712	62259	154971
	жен	87384	64605	151989
	оба	180096	126864	306960

данных детей. Всего в когорту было включено 6244 ребёнка (табл. 1).

Период наблюдения начинался с момента рождения ребёнка. Датой окончания наблюдения для членов когорты, не имеющих злокачественных новообразований, считалась дата выезда из города, или дата смерти, или 31.12.2016 для всех лиц, продолжающих жить в городе. Для членов когорты, у которых были установлены злокачественные новообразования, концом наблюдения была дата постановки диагноза ЗНО пищеварительной системы в период проживания в г. Озёрске. Для лиц, умерших от опухолей пищеварительного тракта концом наблюдения считалась дата смерти, независимо умерли эти люди в городе или вне города, либо дата 31.12.2016.

Данные обо всех случаях онкологических заболеваний и смерти от ЗНО в изучаемой когорте собраны за период 1949–2016 гг. Источниками информации о случаях злокачественных опухолей пищеварительной системы служили медицинские документы (амбулаторные карты), а также документы хирургической (операционные журналы), онкологической (контрольные карты) служб, цитологической и патологоанатомической лабораторий ЦМСЧ № 71 г. Озёрска. На основе указанных источников информации совместно с сотрудниками ЦМСЧ № 71 был создан территориальный ретроспективный регистр рака, включающий все случаи ЗНО среди коренного населения города Озёрска за период с 1948 по 2016 годы.

При расчёте структуры заболеваемости учтены только те случаи, когда диагноз поставлен лицам при проживании в городе. При анализе показателей смертности учитывались случаи смерти как среди людей, живших в городе, так и среди иногородних жителей.

Основным источником информации о дате и причине смерти людей, живших в городе, служили данные бюро ЗАГСа г. Озёрска. Для лиц, умерших вне города, получена информация о факте смерти из адресных бюро, а о дате и причине смерти – из отделов ЗАГСа соответствующего населённого пункта.

Все случаи заболевания и смерти от ЗНО органов пищеварения были закодированы согласно правилам Международной классификации болезней 10 пересмотра (МКБ–10).

### *Дозиметрия*

Все оценки дозы, используемой в работе, основывались на данных дозиметрической системы работников ПО "Маяк" (MWDS-13). Была использована накопленная доза  $\gamma$ -излучения в период беременности в качестве дозы внутриутробного облучения. Так как информации о продолжительности беременности для каждого ребёнка не было найдено, то допущено, что каждая беременность была доношенной и длилась 280 дней. После анализа медицинских документов [14], было предположено, что для детей, родившихся до 1960 г., продолжительность дородового декретного отпуска матери составляла 60 дней, а послеродового – 115 дней. Для детей, родившихся после 1960 г., дородовый отпуск матери составлял 115 дней, послеродовый – 150 дней. Принимая во внимание эти данные, была рассчитана доза за период внутриутробного развития для каждого ребёнка.

В рамках MWDS-13 была рассчитана годовая доза на матку за каждый год работы матери. Если в какой-то год доза не была представлена в базе MWDS-13, то считалось, что женщина в этот год не подвергалась радиационному воздействию (табл. 2).

Основную группу составили дети, имеющие дозы за время внутриутробного развития, в контроль – дети, матери которых начали работать на основных производствах до рождения детей, но у них нет дозы за время беременности. В группу антенатально облучённых людей (основная группа) вошли 3587 чел. Суммарная доза в среднем составила 57,6 мГр, минимальное значение дозы – 0,03 мГр, максимальное – 916,1 мГр.

Следует отметить, что средняя доза за весь исследуемый период среди мужчин, антенатально облучённых и имеющих диагноз ЗНО пищеварительного тракта, была в два раза ниже по сравнению со средней дозой у умерших от рака ЖКТ мужчин (46,8 против 113,3 мГр), а также по сравнению с женщинами, как заболевшими, так и с умершими от ЗНО пищеварительного тракта (106,3 и 110,7 мГр соответственно) (рис. 1).

В данной работе не учитывалось внутреннее облучение от инкорпорированного плуто-

Таблица 2  
Распределение лиц, внутриутробно облучённых, по дозовым интервалам, мГр

Пол	Дозовые интервалы					Всего
	0,1–3,7	3,8–11,3	11,4–32,0	32,1–95,0	Более 95,0	
Мужчины	382	404	366	377	371	1900
min	0,003	3,718	11,345	32,078	95,033	0,003
max	3,690	11,294	31,993	94,985	916,074	916,074
средняя доза	1,743	6,912	20,121	56,749	203,931	56,777
Женщины	337	316	358	345	331	1687
min	0,026	3,708	11,300	32,074	95,215	0,026
max	3,699	11,269	31,921	94,937	851,420	851,420
средняя доза	1,776	6,918	20,216	59,309	206,488	58,576
Оба пола	719	720	724	722	702	3587
min	0,026	3,708	11,300	32,074	95,033	0,026
max	3,699	11,294	31,993	94,985	916,074	916,074
средняя доза	1,758	6,915	20,168	57,973	205,118	57,623

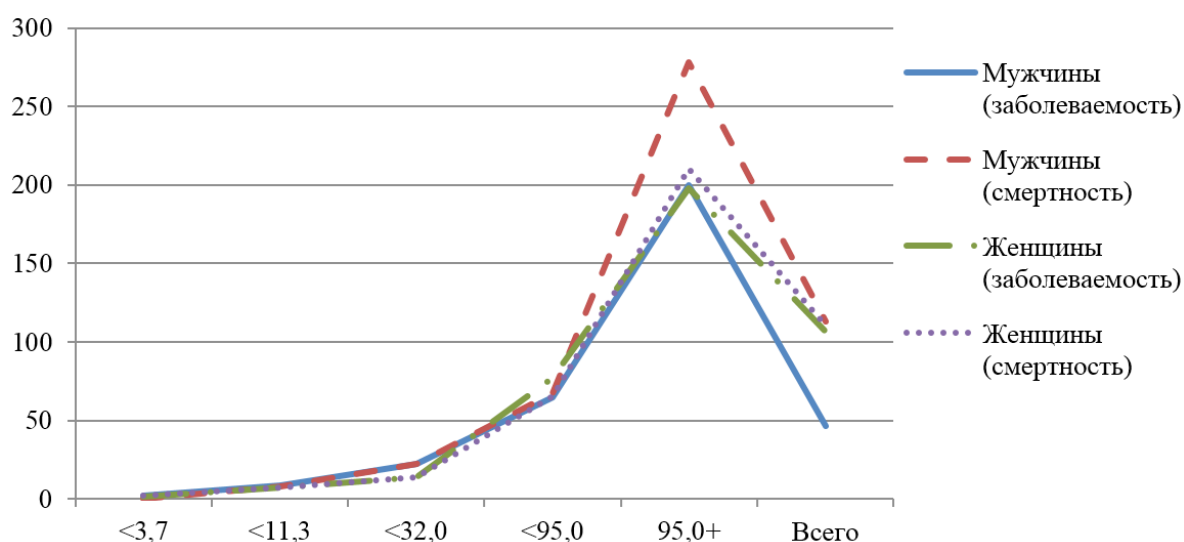


Рис. 1. Средняя доза среди лиц, внутриутробно облучённых, заболевших и умерших от ЗНО органов пищеварения в зависимости от пола, мГр

ния, с которым имели контакт матери внутриутробно облучённых детей.

#### Статистические методы

Канцерогенный риск оценивался по показателям заболеваемости и смертности злока-

чественными новообразованиями пищеварительной системы и брюшины (код по МКБ-10 C15-C26) в соответствии с общепринятой практикой [19].

При расчёте структуры заболеваемости учитывались все случаи впервые выявленных ЗНО пищеварительного тракта. Для оценки



канцерогенного риска по показателям заболеваемости в анализ были включены только первые случаи злокачественных новообразований пищеварительной системы у лиц, имеющих две и более опухоли.

При расчёте структуры и оценки канцерогенного риска по показателям смертности в анализ брались все случаи смерти от злокачественных опухолей органов пищеварения, как у жителей г. Озёрска, так и у лиц, выехавших из города, независимо от года миграции.

Для расчёта избыточных и относительных рисков (ИОР) в качестве функции дозы для общей смертности использовали методы регрессии Пуассона (EpiSurge, модуль AMFIT) [20]. Используемую модель расчёта ИОР можно представить в виде:

$$\lambda_0(a,s) \cdot [1 + ERR(d)],$$

где  $\lambda_0(a,s)$  – фоновая заболеваемость, которая зависит от возраста ( $a$ ), пола ( $s$ );

$ERR(d)$  – функция ИОР,

где  $d$  – доза внутриутробного облучения.

Основой для критериев проверки гипотезы и доверительного интервала послужил критерий отношения правдоподобия и прямая оценка профильного правдоподобия. Двусторонние Р-значения меньше 0,05 считались статистически значимыми.

## РЕЗУЛЬТАТЫ

### *Структура заболеваемости и смертности в изучаемой когорте*

Всего в изучаемой когорте было диагностировано 52 случая рака пищеварительной системы (рис. 2), в том числе 32 случая у мужчин и 20 случаев у женщин.

Структура заболеваемости ЗНО органов пищеварения среди мужчин и женщин практически не различалась. Существенный вклад вносили такие заболевания как рак желудка (37,5 % у мужчин и 25 % у женщин), ЗНО ободочной кишки (21,9 % у мужчин и 35,0 % у женщин) и рак прямой кишки (18,8 % у мужчин и 25,0 % у женщин).

Всего в изучаемой когорте было диагностировано 40 случаев смерти от рака пищеварительной системы (рис. 3), в том числе 23 случая у мужчин и 17 случаев у женщин.

Структура смертности ЗНО органов пищеварения в исследуемой когорте не отличалась от структуры заболеваемости. Первое место занимает рак желудка (52,2 % у мужчин и 41,2 % у женщин). На втором месте стоят ЗНО ободочной кишки (17,4 % у мужчин и 29,4 % у женщин). Третье место занимают опухоли

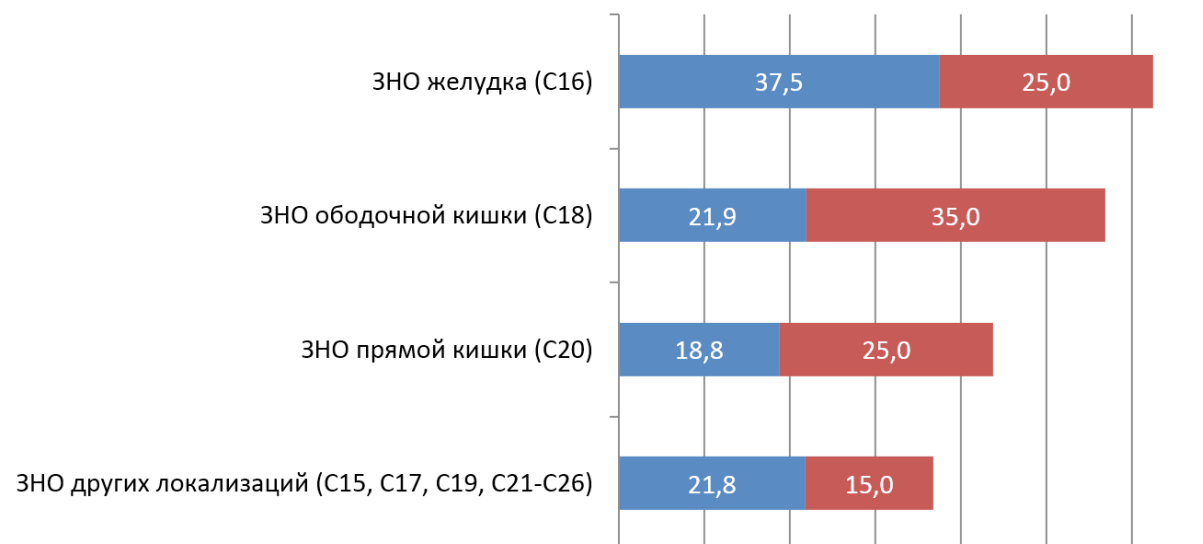


Рис. 2. Структура заболеваемости раком пищеварительной системы в изучаемой когорте

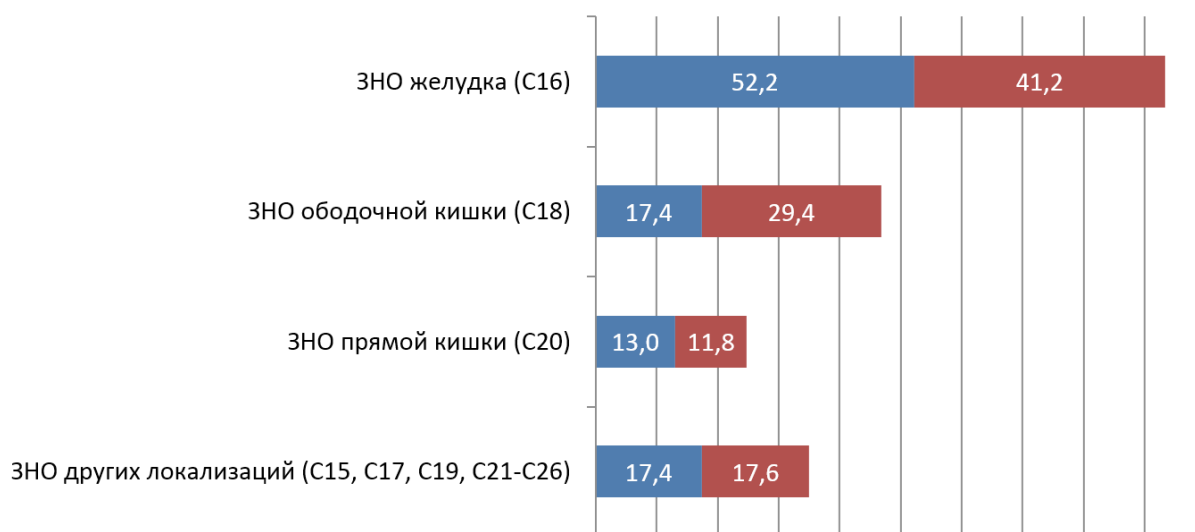


Рис. 3. Структура смертности раком пищеварительной системы в изучаемой когорте

Таблица 3

Показатели заболеваемости раком пищеварительной системы  
среди внутриутробно облучённых людей (случаи на  $10^5$  чел.-лет)

ЗНО органов пищеварения (в скобках код по МКБ-10)	Мужчины		Женщины	
	Основная группа	Контрольная группа	Основная группа	Контрольная группа
Злокачественные новообразования желудка (C16)	16,3*	4,4	1,8*	8,4
Злокачественные новообразования ободочной кишки (C18)	4,9	8,7	7,0	6,3
Злокачественные новообразования прямой кишки, ректосигмоидного соединения и заднего прохода (C19-C20)	6,5	4,4	5,3	4,2
Злокачественные новообразования других локализаций (C15, C17, C21-C26)	9,8	2,1	5,3	0,0
Злокачественные новообразования органов пищеварения и брюшины (C15-C26)	37,5	19,6	19,4	19,0

Примечание. \* Обозначены достоверные различия,  $p < 0,05$ .

прямой кишки (13,0 % у мужчин и 11,8 % у женщин).

**Показатели заболеваемости и смертности  
среди внутриутробно облучённых людей**

Распределение показателей заболеваемости среди мужчин основной и контрольной

групп было одинаковым (табл. 3). На первом месте стоял рак желудка, при этом в основной группе этот показатель достоверно превышал аналогичный показатель в контрольной группе в 4 раза (16,4 против 4,4). Второе место в основной группе занимали ЗНО прямой кишки, а в контрольной – опухоли ободочной кишки, при этом этот показатель заболеваемости в

основной группе был ниже почти в 2 раза, чем в контроле, но это было недостоверно (4,9 против 8,7). Следует также отметить, что показатель заболеваемости от всех злокачественных новообразований пищеварительного тракта в основной группе был недостоверно выше, чем в контроле (37,6 против 19,6).

Среди женщин (табл. 3) распределение показателей заболеваемости в основной и контрольной группах несколько отличалось. Так, в основной группе на первом месте стоял рак ободочной кишки, на втором – опухоли прямой кишки, на третьем – ЗНО печени. В контрольной группе первое место занимали ЗНО желудка, второе – опухоли ободочной кишки, третье – рак прямой кишки. При этом в контроле опухолей печени не было зафиксировано, а рак желудка достоверно превышал аналогичный показатель в основной группе.

Среди мужчин в основной группе главной причиной смерти был рак желудка (табл. 4), который достоверно превышал аналогичный показатель в контрольной группе (11,9 и 1,6 соответственно). Следует отметить, что среди мужчин контрольной группы было только три случая смерти от ЗНО пищеварительной системы, и показатель смертности от всех злокачественных новообразований органов пищеварения в этой группе был достоверно ниже,

чем подобный показатель в основной группе.

Показатели смертности ЗНО пищеварительного тракта среди женщин основной и контрольной группах были практически одинаковыми как в целом, так и по отдельным нозологическим заболеваниям, при этом достоверных отличий не было.

### **Относительный риск и избыточный относительный риск**

Результаты оценки относительного канцерогенного риска заболеваемости и смертности представлены в табл. 5.

Наблюдалось некоторое увеличение относительного риска заболеваемости в зависимости от дозы, но это увеличение не было достоверным. При анализе относительного риска смертности от злокачественных опухолей пищеварительной системы отмечено достоверное увеличение данного показателя в дозовой группе более 95,0 мГр. Данное увеличение, скорее всего, связано с небольшим количеством случаев в данном исследовании.

Величина избыточного относительного риска (ИОР) заболеваемости ЗНО органов пищеварения на 1 Гр внутриутробного  $\gamma$ -излучения составила -0,39 (95% ДИ -2,60–6,24), что статистически недостоверно. При расчёте ИОР

Таблица 4

Показатели смертности раком пищеварительной системы  
среди внутриутробно облучённых мужчин

ЗНО органов пищеварения (в скобках код по МКБ-10)	Мужчины		Женщины	
	Основная группа	Контрольная группа	Основная группа	Контрольная группа
Злокачественные новообразования желудка (C16)	11,9*	1,6	2,3	7,7
Злокачественные новообразования ободочной кишки (C18)	3,2	1,6	4,6	1,5
Злокачественные новообразования прямой кишки, ректосигмоидного соединения и заднего прохода (C19-C20)	3,2	0,0	0,0	3,1
Злокачественные новообразования других локализаций (C15, C17, C21-C26)	3,2	1,6	6,4	0,0
Злокачественные новообразования органов пищеварения и брюшины (C15-C26)	21,6*	4,8	10,3	12,4

Примечание. \* Обозначены достоверные различия,  $p < 0,05$ .

заболеваемости по дозовым интервалам достоверного превышения показателя найдено не было (рис. 4).

Величина избыточного относительного риска смертности ЗНО органов пищеварения на 1 Гр внутриутробного  $\gamma$ -излучения составила -0,39 (95% ДИ -2,60–6,24), что статистически недостоверно. При расчёте ИОР смертности по дозовым интервалам достоверное превышение показателя было найдено в дозовой группе более 95,0 мГр (рис. 5). Данные изменения, скорее всего, связаны с небольшим количеством случаев в исследуемой когорте.

Таблица 5

Относительный риск заболеваемости и смертности раком пищеварительной системы по дозовым интервалам

Дозовые интервалы, мГр	Относительный риск заболеваемости	Относительный риск смертности
0	1,00	1,00
0,1–3,7	1,44 (0,52–3,90)	0,98 (0,22–4,44)
3,8–11,3	1,60 (0,67–3,83)	2,33 (0,90–6,01)
11,4–32,0	1,41 (0,61–3,25)	1,05 (0,33–3,29)
32,1–95,0	1,01 (0,40–2,54)	1,17 (0,41–3,28)
Более 95,0	1,35 (0,59–3,13)	2,43 (1,05–5,63)

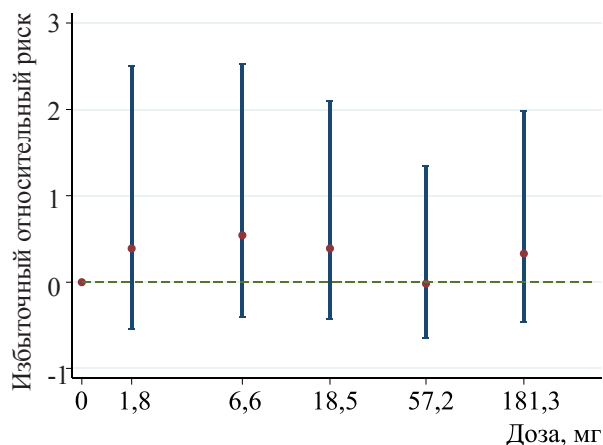


Рис. 4. ИОР заболеваемости ЗНО пищеварительной системы для дозовых категорий внутриутробного облучения. Точками отмечен ИОР с ДИ

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проблема возникновения, диагностики, лечения и профилактики злокачественных опухолей желудочно-пищеварительного тракта как никогда актуальна в современном мире. В то же время доказанных данных о преобладании того или иного фактора в возникновении опухолей ЖКТ в настоящий момент мало. Существует возможность определить группы риска и назвать факторы, провоцирующие возникновение рака органов пищеварения. Радиационный фактор является одной из известных причин заболеваемости и смертности от злокачественных новообразований, в том числе и опухолей органов пищеварения.

Данное исследование проведено на основе Детского регистра, который включает в себя более 80 тыс. людей, рождённых в г. Озёрске или приехавших в него в детском возрасте. Для проведения исследования была сформирована когорта людей 1949–1988 годов рождения, матери которых начали работать на ПО "Маяк" до рождения детей. Всего в когорту было включено 6244 ребёнка.

За весь период наблюдения количество случаев ЗНО пищеварительной системы составило 52 случая, что не превышало 1 % от числа всех зарегистрированных злокачествен-

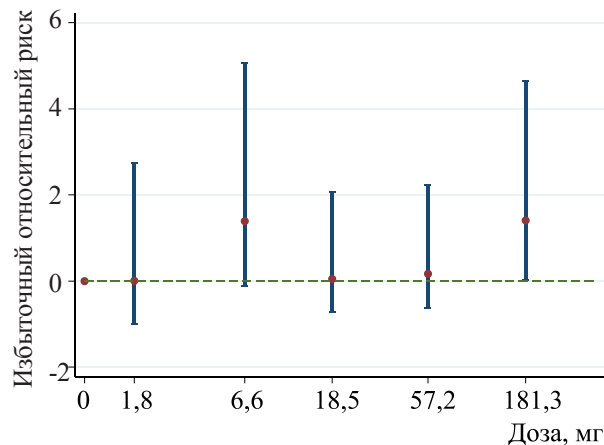


Рис. 5. ИОР смертности ЗНО пищеварительной системы для дозовых категорий внутриутробного облучения. Точками отмечен ИОР с ДИ

ных новообразований в исследуемой когорте. Умерло от рака органов пищеварения 40 чел. По полу исследуемая когорта не отличалась. Жизненный статус установлен для более 90 % лиц, включённых в когорту.

В группу антенатально облучённых людей вошли 3587 чел. Суммарная доза в среднем составила 57,6 мГр, минимальное значение дозы – 0,003 мГр, максимальное – 916,1 мГр. Средняя доза за весь исследуемый период среди мужчин, антенатально облучённых и имеющих диагноз ЗНО пищеварительного тракта, была в два раза ниже по сравнению со средней дозой у умерших от рака ЖКТ мужчин (46,8 против 113,3 мГр), а также по сравнению с женщинами, как заболевшими, так и с умершими от ЗНО пищеварительного тракта (106,3 и 110,7 мГр соответственно).

Всего в изучаемой когорте было диагностировано 52 случая рака пищеварительной системы, в том числе 32 случая у мужчин и 20 случаев у женщин. Также было зафиксировано 40 случаев смерти (23 случая у мужчин и 17 случаев среди женщин).

Структура заболеваемости ЗНО органов пищеварения среди мужчин и женщин практически не различалась. Существенный вклад вносили такие заболевания как рак желудка, ЗНО ободочной кишки и рак прямой кишки. Аналогичная структура опухолей пищеварительной системы была показана в предыдущих исследованиях.

Структура смертности ЗНО органов пищеварения в исследуемой когорте не отличалась от структуры заболеваемости. Первое место занимает рак желудка, на втором месте стоят ЗНО ободочной кишки, третье место занимают опухоли прямой кишки.

При анализе показателей заболеваемости и смертности внутри исследуемой когорты было найдено превышение ЗНО органов пищеварения среди мужчин основной группы по сравнению с контрольной группой, что достигалось в основном за счёт опухолей желудка. У женщин контрольной группы заболеваемость раком желудка был достоверно выше, чем аналогичный показатель в основной группе. Такие различия, скорее всего, могут быть объяснены небольшим количеством случаев ЗНО пищеварительной системы в исследуемой когорте.

Наблюдалось некоторое увеличение относительного риска заболеваемости в зависимости от дозы, но это увеличение не было достоверным. Величина избыточного относительного риска (ИОР) заболеваемости ЗНО органов пищеварения на 1 Гр внутриутробного  $\gamma$ -излучения составила -0,39 (95% ДИ -2,60–6,24), что статистически недостоверно. При расчёте ИОР заболеваемости по дозовым интервалам достоверного превышения показателя найдено не было.

В то же время при анализе относительного риска смертности было отмечено достоверное увеличение показателя в дозовой группе выше 95,0 мГр, как и при оценке избыточного относительного риска смертности. Данное увеличение, скорее всего, связано с небольшим количеством случаев смерти в исследуемой когорте.

Ограничением данного исследования является то обстоятельство, что у нас нет информации о других нерадиационных факторах, которые способствуют увеличению риска заболеваемости органов пищеварения (факт ожирения, употребление алкоголя и курение, наличие хронических заболеваний пищеварительного тракта). Несмотря на эти недостатки, следует отметить уникальность данной когорты. Это одно из немногих исследований, на основе которого возможно оценить количественную роль внутриутробного воздействия радиационного излучения на риск заболеваемости на протяжении всей жизни.

Исследуемая когорта ещё сравнительно молодая (средний возраст –  $49 \pm 16$  лет, максимально достигнутый возраст – 68 лет). По мере старения когорты будет увеличиваться количество случаев, и будет возможно повторить анализ данных при большей статистике, чтобы получить более точные оценки риска заболеваемости ЗНО органов пищеварения в когорте облучённых *in utero*.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Макимбетов Э.К., Салихар Р.И., Туманбаев А.М. и др. Эпидемиология рака в мире // Современные проблемы науки и образования. – 2020. – № 2.
2. Arnold M., Sierra M.S., Laversanne M. et al. Global patterns and trends in colorectal cancer



- incidence and mortality // *Gut*. – 2017. – No. 66. – P. 683–691.
3. Thrift A.P., El-Serag H.B. Burden of Gastric Cancer // *ClinGastroenterolHepatol*. – 2020. – V. 18. – No. 3. – P. 534–542.
4. Базин И.С., Гарин А.М., Жарков С.А., Нариманов М.Н. Рак толстой кишки – состояние проблемы // Российский онкологический научный центр им. Н.Н. Блохина РАМН. – 2003. – № 11.
5. Karimi P., Islami F., Anandasabapathy S. et al. Gastric cancer: descriptive epidemiology, risk factors, screening and prevention // *Cancer Epidemiologic Biomarkers Prev*. – May 2014. – V. 23 (5). – P. 700–713.
6. Weaver A.J., Stafford R., Hale J. et al. GBD Collaborators. Geographical and Temporal Variation in the Incidence and Mortality of Hepato-Pancreato-Biliary Primary Malignancies: 1990-2017 // *J. Surg Res*. – 2020. – No. 245. – P. 89–98.
7. Никольченко А.А. Онкологические заболевания пищеварительной системы // X Международная студенческая научная конференция, 2018 г.
8. Rawla P., Sunkara T., Barsouk A. Epidemiology of colorectal cancer: incidence, mortality, survival, and risk factors // *PrzGastroenterol*. – 2019. – V. 14. – No. 2. – P. 89–103.
9. Sharma R. An examination of colorectal cancer burden by socioeconomic status: evidence from GLOBOCAN 2018 // *EPMA J*. – 2019. – V. 11. – No. 1. – P. 95–117.
10. Schulze-Rath R, Hammer GP, Blettner M. Are pre- or postnatal diagnostic X-rays a risk factor for childhood cancer? // *Radiation Environmental Biophys*. – 2008. – No. 47(3). – P. 301–312.
11. Stewart A., Kneale G.W. Radiation dose effects in relation to obstetric X-rays and childhood cancers // *Lancet*. – 1970. – 6 Jun. – P. 1185–1188.
12. Kneale G.W., Stewart A.M. Mantel-Haenszel analysis of Oxford data: II. Independent effects of fetal irradiation // *J. Natl. Cancer Inst*. – 1976. – No. 57. – P. 1009–1014.
13. Preston D.L., Cullings H., Suyama A. et al. Solid cancer incidence in atomic bomb survivors exposed in utero or as young children // *J. of the National Cancer Institute*. – 2008. – No. 100. – P. 428–436.
14. Delongchamp R.R., Mabuchi K., Yoshimoto Y., Preston D.L. Cancer mortality among atomic bomb survivors exposed in utero or as young children, October 1950-May 1992 // *Radiat. Res*. – 1997. – V. 147. – No. 3. – P. 385–395.
15. Schonfeld S.J., Tsareva Y.V., Preston D.L. et al. Cancer Mortality Following In Utero Exposure Among Offspring of Female Mayak Worker Cohort Members // *Radiation Research*. – 2012. – No. 178. – P. 160–165.
16. Царева Ю.В., Шонфелд С.Дж., Престон Д.Л. и др. Оценка канцерогенного риска по показателям онкологической смертности среди людей, облучённых внутриутробно / Тезисы докл. на международной конференции "Медико-биологические проблемы действия радиации", Москва, 10–11 апреля 2012 г. – М.: ФГУ ФМБЦ им. А.И.Бурназяна, 2012. – С. 107.
17. Deltour I., Tretyakov F., Tsareva Y. et al. Mortality of populations potentially exposed to ionizing radiation, 1953–2010, in the closed city of Ozyorsk, Southern Urals: a descriptive study // *Environmental Health*. – 2015. – V. 14. – No. 91. – P. 1–12.
18. Tsareva Y., Deltour I., Sokolnikov M. et al. Risk of solid cancer in the offspring of female workers of the Mayak nuclear facility in the Southern Urals, Russian Federation // *Radiation and Environmental Biophysics*. – 2016. – 07 April.
19. Кошурникова Н.А., Кабирова Н.Р., Болотникова М.Г. и др. Характеристика регистра лиц, проживавших в детском возрасте вблизи ПО "Маяк" // *Мед. радиология и радиац. безопасность*. – 2003. – № 2. – С. 27–34.
20. Thompson D.E., Mabuchi K., Ron E. et al. Cancer Incidence in Atomic Bomb Survivors. Part II: Solid Tumors, 1958–1987 // *Radiation Research*. – 1994. – No. 137. – P. 17–67.

## ГЛАГОЛЕНКО ЮРИЮ ВАСИЛЬЕВИЧУ – 75 ЛЕТ



В октябре 2021 года отметил свой 75-летний юбилей Глаголенко Юрий Васильевич – один из знаковых и ключевых (в недалёком прошлом) руководителей ФГУП "ПО "Маяк", крупный специалист в области радиоэкологии, радиационной безопасности и охраны окружающей среды отрасли, кандидат технических наук, лауреат премии Правительства Российской Федерации в области науки и техники, заслуженный химик РФ.

После окончания в 1969 году Уральского политехнического института Юрий Васильевич был направлен на ПО "Маяк", где он проработал более 40 лет. Свою трудовую деятельность на предприятии Юрий Васильевич начал в Центральной заводской лаборатории (ЦЗЛ), где он последовательно прошёл трудный путь от инженера-технолога, инженера-химика-технолога-исследователя, старшего инженера-радио химика, старшего инженера-химика-технолога-исследователя, руководителя группы до начальника ЦЗЛ (1989 год).

В этот период Юрий Васильевич зарекомендовал себя не только как ведущий специалист отрасли в области прикладной радиохимии, но и как активный участник, руководитель и координатор многих научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ по изучению сорбционного поведения радионуклидов в техногенных средах, исследованию состава, свойств и поведения технологических осадков, а также разработки перспективных дезактивационных рецептур. Он является автором более 30 свидетельств и патентов на изобретения.

Юрий Васильевич активно поддерживал восстановление творческих контактов с ведущими институтами Академии наук России, участвовал в организации и руководстве ряда крупных международных совместных проектов в области радиоэкологии и радиационной безопасности.

В 1995 году Ю.В. Глаголенко был назначен заместителем главного инженера предприятия по научной части и химической технологии, позже – заместителем генерального директора по химико-металлургическому производству и научной работе, а в 2001 году – директором по новым производствам, науке и экологии ФГУП "ПО "Маяк".

В этот период времени основные усилия Юрия Васильевича были направлены на решение проблем "Ядерного наследия" и радиоэкологической безопасности предприятия, на организацию на предприятии работ по программе ВОУ-НОУ, созданию производственных участков по получению новых материалов для нужд атомной энергетики. Под его руководством был выполнен огромный объём работ в области охраны окружающей среды, включая разработку и внедрение принципиально новой нормативно-правовой документации, а также конкретных инженерных решений ряда экологических проблем ПО "Маяк".

В 2009 году за научное обоснование технологии и реализацию работ по выводу из эксплуатации радиационно-опасных природно-техногенных объектов первого атомного проекта на примере водоёма Карачай – хранилища жидких радиоактивных отходов ФГУП "ПО "Маяк" – Юрию Васильевичу присуждена премия Правительства Российской Федерации в области науки и техники.

Юрий Васильевич являлся одним из активных организаторов создания на предприятии собственного научно-практического журнала "Вопросы радиационной безопасности", автором многих публикаций по концептуальным вопросам развития атомной промышленности и ФГУП "ПО "Маяк", длительное время входил в состав редколлегии журнала.

*Коллектив редколлегии нашего журнала и сотрудники предприятия сердечно поздравляют Юрия Васильевича с юбилеем и желают ему здоровья, творческого долголетия и благополучия.*

## КОШУРНИКОВОЙ НИНЕ АЛЕКСАНДРОВНЕ – 95 ЛЕТ



24 декабря 2021 года отметила свой юбилей главный научный сотрудник Южно-Уральского института биофизики, доктор медицинских наук, профессор, почётный гражданин г. Озёрска Нина Александровна Кошурникова.

Нина Александровна родилась в г. Томске. С 1944 по 1949 гг. училась в Новосибирском медицинском институте, после окончания которого работала врачом акушером-гинекологом в МСО-71 3 ГУМЗ СССР. С 1953 по 1956 гг. проходила обучение в клинической ординатуре и аспирантуре НИИ акушерства и гинекологии МЗ СССР. После защиты кандидатской диссертации в 1958 г. переведена в Филиал № 1 Института биофизики МЗ СССР (с 2005 г. ФГУП Южно-Уральский институт биофизики ФМБА России) в лабораторию патологической анатомии. С 1995 г. является главным научным сотрудником института и по сей день трудится в лаборатории радиационной эпидемиологии, созданной в 1992 г. по её инициативе и при её непосредственном участии.

Научно-исследовательская работа Нины Александровны связана с изучением отдалённых последствий радиационного воздействия в эксперименте и в эпидемиологических исследованиях. Нина Александровна является одним из пионеров-исследователей медицинских последствий профессионального воздействия трансурановых радионуклидов, в частности  $^{239}\text{Pu}$ . Коллективом авторов, в который входила Нина Александровна, впервые был раскрыт патогенез индуцированного плутонием пневмосклероза и показано, что данное заболевание является одним из видов лучевого пневмонита. По инициативе Н.А. Кошурниковой созданы основные регистры: медико-дозиметрический Регистр персонала ПО "Маяк"; Детский регистр для оценки состояния здоровья потомков 1-го и 2-го поколений персонала предприятия и детского населения г. Озёрска, расположенного в зоне влияния ПО "Маяк"; регистр учёта случаев онкологических заболеваний жителей г. Озёрска, диагностированных с 1948 г. Нина Александровна активно передаёт свои знания коллегам по работе и способствует их творческому росту, заряжая всех своей неиссякаемой энергией и оптимизмом. Она подготовила доктора медицинских наук и 8 кандидатов медицинских и биологических наук. Нина Александровна является автором и соавтором 230 научных работ, опубликованных в ведущих научных изданиях в стране и за рубежом, включая 15 публикаций в нашем журнале и 5 монографий. Нина Александровна стояла у истоков зарождения нашего журнала, много сделала для поднятия его научного авторитета и международного признания, является бессменным и активным членом редколлегии.

За многолетнюю плодотворную и многогранную работу, за успехи в углублении и расширении знаний в области радиационной эпидемиологии, научно-педагогическую, организаторскую и общественную деятельность Н.А. Кошурникова отмечена многочисленными наградами: медалями "За доблестный труд" в ознаменование 100-летия со дня рождения В.И. Ленина (1970) и "Ветеран труда" (1984); ведомственными знаками отличия: "Отличнику здравоохранения" (1964), "Ветеран атомной энергетики и промышленности" (2002), Золотой крест ФМБА России (2016) и нагрудным знаком "А.И. Бурназян" (2011). Кошурникова Н.А. является Лауреатом премии губернатора Челябинской области (2016).

*Редколлегия нашего журнала, сотрудники Южно-Уральского института биофизики и все, кто знает Нину Александровну, сердечно поздравляют её с юбилеем. Желаем ей здоровья, творчества и благополучия.*

# **RADIATION SAFETY PROBLEMS**

Scientific Journal

FEDERAL STATE UNITARY ENTERPRISE "MAYAK" Production Association  
State Atomic Energy Corporation Rosatom

№ 4 (104) 2021

CHIEF EDITOR Yu.G. MOKROV  
DEPUTY CHIEF EDITOR I.G. TANANAEV

## **EDITORIAL ADVISORY COMMITTEE**

A.V. Akleyev, V.N. Bolshakov, L.A. Bolshov, V.I. Velichkin,  
E.A. Demchenko (publ. manager), M.V. Zhukovsky, I.A. Ivanov, L.A. Ilyin,  
S.N. Kalmykov, D.N. Kolupaev, N.A. Koshurnikova, A.I. Kryshev, A.A. Kuvaev,  
I.I. Linge, M.V. Logunov, B.F. Myasoedov, M.G. Nagornaya, M.I. Pokhlebaev,  
E.A. Pryakhin, S.A. Romanov, M.E. Sokolnikov, A.V. Trapeznikov,  
S.S. Utkin, A.P. Khomyakov, V.F. Khokhryakov, S.V. Yudintsev

---

## **CONTENTS**

---

### **1. RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT**

**Yu.V. Kozina, N.A. Kuznetsova, N.I. Valova.** Study of Efficiency of Ultrasound  
Decontamination in the Presence of Shielding Materials 3

### **2. RADIATION SAFETY**

**A.G. Kharlova, Ye.V. Lyzlova, A.V. Konnikov, M.A. Litvinova.** Study of Leaching  
of Borosilicate Glasses Intended for Radionuclide Sources for the Purpose of Assessing  
Radiation Effect on Chemical Durability of Glass at Long-Term Storage 13

### **3. RADIOCHEMICAL TECHNIQUES OF SNF REPROCESSING**

**V.S. Yermolin, M.V. Logunov, Yu.A. Voroshilov, A.V. Konnikov, S.A. Lukin.** Overview  
of Existing Technologies of Uranium-Zirconium SNF Dissolution 20

**Yu.M. Kulyako, T.I. Trofimov, S.A. Perevalov, K.S. Pilyushenko, S.Ye. Vinokurov,  
B.F. Myasoyedov.** Production of Ceramic Uranium-Oxide Fuel Compositions Using  
Microwave Radiation 34

### **4. RADIOACTIVE WASTE & ENVIRONMENT**

**Yu.G. Mokrov, K.Yu. Mokrov.** Peculiarities of Radiation Situation Development  
in the Regions Located in the Vicinity of the Techa River by the Case of Metlinskiy Pond 47

---

**CONTENTS**

---

**5. RADIATION EXPOSURE & HUMAN HEALTH**

<b>N.I. Atamanyuk, Ye.V. Styazhkina, N.A. Obvintseva, G.A. Tryapitsyna, I.A. Shaposhnikova, S.S. Andreyev, A.Ye. Aldibekova, A.A. Peretykin, Ye.A. Pryakhin.</b> Kinetics of Bone Marrow Cell Death and Recovery in Two Mice Strains With Different Radiosensitivity After Acute Gamma Radiation Exposure	62
<b>Yu.V. Tsareva, P.V. Okatenko.</b> Assessment of Risk of GI Malignancies in the Cohort of Children Exposed in Utero	73

**6. INFORMATION & PERSONALIA**

The 75 <sup>th</sup> Anniversary of Yu.V. Glagolenko	83
The 95 <sup>th</sup> Anniversary of N.A. Koschurnikova	84
<b>CONTENTS</b>	<b>85</b>
<b>ABSTRACTS</b>	<b>87</b>
<b>Information about Authors</b>	<b>91</b>
<b>Contents of the journal for 2021</b>	<b>94</b>
<b>Instructions for manuscript submission</b>	<b>98</b>

The journal is included in the list of peer-reviewed scientific journals and publications recommended for publication of principal scientific results of Doctoral and Candidate's dissertations.



## ABSTRACTS

### STUDY OF EFFICIENCY OF ULTRASOUND DECONTAMINATION IN THE PRESENCE OF SHIELDING MATERIALS

**Yu.V. Kozina, N.A. Kuznetsova, N.I. Valova**  
**FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia**

The objective of the study focused on cavitation damage of aluminum in the presence of shielding materials was to confirm the presence of the shielding effect. The study investigated the relationship between efficiency of ultrasound decontamination in the presence of shielding materials and temperature and composition of the decontaminating solution.

The study used the decontaminating solutions used at the Mayak PA subdivisions.

Optimal conditions were identified for the process of ultrasound decontamination of the structural materials in the presence of shielding materials. These conditions include decontamination agents and temperatures, at which maximum decontamination factors are achieved.

**KEYWORDS:** DECONTAMINATION, RADIOACTIVE CONTAMINATION, DECONTAMINATION SOLUTION, DECONTAMINATION FACTOR, SHIELDING EFFECT

### STUDY OF LEACHING OF BOROSILICATE GLASSES INTENDED FOR RADIONUCLIDE SOURCES FOR THE PURPOSE OF ASSESSING RADIATION EFFECT ON CHEMICAL DURABILITY OF GLASS AT LONG-TERM STORAGE

**A.G. Kharlova, Ye.V. Lyzlova, A.V. Konnikov, M.A. Litvinova**  
**FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia**

The study was focused on strontium glasses produced at the Mayak PA in 1992 and 2003 and intended for manufacture of radionuclide heat sources and thermoelectric generators. During storage, the glasses under study with significant  $^{90}\text{Sr}$  content were exposed to self-irradiation with absorbed doses of up to  $1.36 \cdot 10^{11}$  and  $0.71 \cdot 10^{11}$  Gy, respectively.

In the course of the testing it was established that leaching rates of  $^{90}\text{Sr}$  for solid specimens of simulated strontium-borosilicate glass ranged from  $3.8 \cdot 10^{-5}$  to  $7.4 \cdot 10^{-4}$  g/(cm<sup>2</sup>·day) and from  $1.4 \cdot 10^{-4}$  to  $2.0 \cdot 10^{-3}$  g/(cm<sup>2</sup>·day) for ground glass specimens. For solid specimens of simulated strontium-beryllium-borosilicate glass, leaching rate of strontium was in the range of  $3.9 \cdot 10^{-4}$  to  $2.1 \cdot 10^{-4}$  g/(cm<sup>2</sup>·day), for the ground glass specimens it ranged from  $2.1 \cdot 10^{-4}$  to  $2.5 \cdot 10^{-4}$  g/(cm<sup>2</sup>·day). Leaching rates of  $^{90}\text{Sr}$  from finely crushed glass with a fraction size of 3 to 4 mm were  $3.2 \cdot 10^{-6}$  g/(cm<sup>2</sup>·day) for strontium-borosilicate glass and  $4.0 \cdot 10^{-4}$  g/(cm<sup>2</sup>·day) for strontium-beryllium-borosilicate glass.

**KEYWORDS:**  $^{90}\text{Sr}$ , LEACHING, STRONTIUM-BOROSILICATE GLASS, STRONTIUM-BERYLLIUM-BOROSILICATE GLASS, RADIONUCLIDE HEAT SOURCES, RADIOISOTOPE THERMOELECTRIC GENERATORS

## **OVERVIEW OF EXISTING TECHNOLOGIES OF URANIUM-ZIRCONIUM SNF DISSOLUTION**

**V.S. Yermolin, M.V. Logunov, Yu.A. Voroshilov, A.V. Konnikov, S.A. Lukin**  
**FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia**

Reprocessing of uranium-zirconium fuel is one of the most challenging tasks faced by any SNF reprocessing facility, including the RT-1 Plant that is a subdivision of the Mayak Production Association. This fuel is not dissolved in nitric acid directly and, therefore, there is a need to find possible alternative solutions aimed at transferring uranium-zirconium compositions to a nitric acid solution.

The objective of the overview is to analyze reference scientific literature related to studies of different methods used for dissolving zirconium-containing materials.

The overview of scientific reference literature demonstrated that dissolution of zirconium-containing materials is rather an extraordinary challenge without simple solutions available. Most of the described methods use corrosion-hazardous agents. At that, application of such substances at the initial stages of SNF reprocessing results in their redistribution along the process chain that leads to enhanced corrosion of equipment of the entire reprocessing facility.

However, only methods based on the use of fluoride ions have been adapted at the level of semi-industrial facilities. These methods have the above-mentioned drawbacks but also they have a set of conditions that mitigate (or minimize) high corrosive activity of the solutions used.

The overview demonstrated that a search for more acceptable options of dissolution of zirconium-containing materials remains a challenging problem in the USA today. For example, a method of high temperature distillation of zirconium halogens is developing with the purpose to separate this metal into an individual flow at the initial stages of SNF reprocessing.

**KEYWORDS:** ZIRCONIUM, URANIUM, URANIUM-ZIRCONIUM ALLOY, SNF, NITRIC ACID, DISSOLUTION, FLUORIDE ION, CORROSION

## **PRODUCTION OF CERAMIC URANIUM-OXIDE FUEL COMPOSITIONS USING MICROWAVE RADIATION**

**Yu.M. Kulyako, T.I. Trofimov, S.A. Perevalov, K.S. Pilyushenko, S.Ye. Vinokurov,**  
**B.F. Myasoyedov**

**V.I. Vernadskiy Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry of the RAS, Moscow, Russia**

The paper investigates the feasibility of using microwave radiation for preparation of uranium dioxide powder (as the basis of nuclear fuel) from its nitrate solutions and uranium trioxide powder, inter alia in the presence of organic reducing agents (carbohydrazide, acetohydroxamic and aminoacetic acids), and also in the reducing, inert atmosphere and in the air. The granulometric composition, particle morphology, and physicochemical and technological properties of the obtained samples of uranium dioxide powder have been studied. It is shown that the bulk density, specific surface area and mass fraction of moisture of the resulting uranium dioxide powder meet the regulatory requirements. Influence of uranium dioxide powder pressing and sintering conditions on quality of the manufactured pellets has been studied in the presence of microwave radiation. It is shown that sintering of compressed uranium dioxide pellets using a microwave radiation power of 2.1 kW at a temperature of 1,650 °C for 2 hours results in the production of ceramic pellets with a density of about 10.42 g/cm<sup>3</sup> and an open porosity of about 0.25 vol. %, which meets the requirements for fuel pellets.

**KEYWORDS:** URANIUM DIOXIDE, URANIUM TRIOXIDE, URANYL NITRATE, DENITRATION, MICROWAVE RADIATION, NUCLEAR FUEL, SINTERING, FUEL PELLETS

## PECULIARITIES OF RADIATION SITUATION DEVELOPMENT IN THE REGIONS LOCATED IN THE VICINITY OF THE TECHA RIVER BY THE CASE OF METLINSKIY POND

**Yu.G. Mokrov, K.Yu. Mokrov**  
**FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia**

Gamma radiation of the water body (WB) shoreline is known to be the primary source, which determines the radiation field parameters in the vicinity of the WB contaminated with radionuclides. Based on archival data analysis, basic regularities of spatial distribution (SD) of exposure and effective dose rates (EDR and EffDR) were identified near such WBs. The identified regularities were conditioned by the peculiarities of transfer of gamma quanta subject to multiple scattering in the atmosphere. For example, it was demonstrated that, as distances from various WBs increase, the transverse SD of EDR may be presented in the form of an exponential dependence with the same coefficient  $\alpha \approx 0.011 \text{ m}^{-1}$ , and the maximum EDR for the vertical SD is observed at a height of  $\sim 10 \text{ m}$  from the ground.

A one-dimensional analytical model of the reference gamma radiation field for a point source (PS) was proposed that allows obtaining surface SDs of EffDR for a shoreline of a reservoir of an arbitrary shape as a superposition of the PS. The model was tested by comparing experimental and calculated SDs of EDR obtained for the water area of Metlinskiy pond for the geometry of linear sources (LS).

On the basis of archival data (1951–1954) related to radiation monitoring of Metlinskiy pond and results of retrospective thermoluminescent dosimetry (TLD) received for brick samples taken from different places of the Metlino mill, a new methodological approach was proposed for assessing external exposure dose to the Techa River cohort population with the aim to specify risks caused by prolonged exposure to radiation. It was shown that main exposure of the Metlino Settlement population to external radiation took place in the period from October 13 to 22 of 1951, when the settling ponds were "flushed". The obtained results allow suggesting that for the most part of the population under consideration external radiation exposure was of acute rather than of prolonged character.

**KEYWORDS:** THE TECHA RIVER, RADIOACTIVE CONTAMINATION, BOTTOM SEDIMENTS, EXTERNAL EXPOSURE OF POPULATION

## KINETICS OF BONE MARROW CELL DEATH AND RECOVERY IN TWO MICE STRAINS WITH DIFFERENT RADIOSENSITIVITY AFTER ACUTE GAMMA RADIATION EXPOSURE

**N.I. Atamanyuk<sup>1,2</sup>, Ye.V. Styazhkina<sup>1,2</sup>, N.A. Obvintseva<sup>1</sup>, G.A. Tryapitsyna<sup>1,2</sup>,  
 I.A. Shaposhnikova<sup>1</sup>, S.S. Andreyev<sup>1</sup>, A.Ye. Aldibekova<sup>1</sup>, A.A. Peretykin<sup>1</sup>, Ye.A. Pryakhin<sup>1</sup>**  
<sup>1</sup>FSBIS Urals Research Center for Radiation Medicine of FMBA of Russia, Chelyabinsk, Russia  
<sup>2</sup>FSBEI HE Chelyabinsk State University, Chelyabinsk, Russia

The regularities of the parameters of hematopoietic stem cells (HSC) and the survival rate of C57Bl/6 mice with normal radiosensitivity and NOD SCID mice with high radiosensitivity after external acute gamma irradiation in different doses were determined. We identified two indicators that are potentially suitable for assessing mice radiosensitivity: the ratio of the relative intensity of fluorescence  $\gamma\text{H2AX}$  protein (DNA double-strand breaks marker) in bone marrow cells on day 14 to this parameter on day 3; the ratio of the percentage of HSCs (CD117<sup>+</sup> cells) among the nucleated cells of the bone marrow on the 14<sup>th</sup> day in relation to this indicator on the 3<sup>rd</sup> day after irradiation. These coefficients statistically significantly depend on the dose of radiation exposure and have similar values in various radiosensitive NOD SCID mice and C57Bl/6 mice after irradiation in equally effective doses. We suggest that these ratios can be used to assess human radiosensitivity in a model of xenotransplantation of human HSCs to immunodeficient mice.

KEYWORDS: HEMATOPOIETIC STEM CELLS,  $\gamma$ H2AX, RADIOSENSITIVITY PREDICTORS, ACUTE RADIATION SYNDROME, NOD SCID MICE, C57Bl/6 MICE

## **ASSESSMENT OF RISK OF GI MALIGNANCIES IN THE COHORT OF CHILDREN EXPOSED IN UTERO**

**Yu.V. Tsareva, P.V. Okatenko**

**FSUE Southern Urals Biophysics Institute of the FMBA of Russia, Ozyorsk, Russia**

GI malignancies are considered to be one of the most common cancer pathologies in the world. These malignancies are especially pernicious and cause half of deaths among diagnosed cancer cases. The objective of the work was to assess risks of GI malignancies on the basis of morbidity and mortality rates among children exposed in utero as a result of occupational exposure of their mothers working at the Mayak Production Association. Materials and methods. Analysis was conducted for the cohort of descendants born in 1949–1988 that included 6,244 children, 3,587 of which had been exposed to external gamma radiation in utero. Patterns of morbidity and mortality related to GI malignancies were analyzed. Morbidity and mortality rates in the test and control groups were studied. Relative and excess relative risks were calculated using GI cancer morbidity and mortality rates. In utero exposure ranged from 0.03–916.1 mGy with an average value of 57.6 mGy. Calculations were carried out in accordance with the established practice using the AMFIT Code of the EPICURE Software Package. Results. Patterns of GI cancer morbidity and mortality in the examined cohort did not vary between males and females. Stomach and colorectal cancers were determined to be significant contributors. Analysis of morbidity and mortality rates in the cohort under study demonstrated an increased number of GI malignancies for males of the test group as compared to the control group primarily due to a significant increase in stomach cancers. Stomach cancer incidence was significantly higher among females of the control group as compared to the test group. A significant increase in the relative and excess relative mortality risk was found regarding the dose range higher than 95.0 mGy. Conclusion. The cohort under study is one of a few cohorts that may be used for assessment of quantitative effect of in utero radiation exposure on morbidity and mortality due to malignancies developed at different sites, including organs of the gastrointestinal tract.

KEYWORDS: IN UTERO RADIATION EXPOSURE, MORBIDITY AND MORTALITY PATTERNS, RELATIVE RISK, EXCESS RELATIVE RISK, MAYAK PA

**Главный редактор**

Мокров Юрий Геннадьевич — доктор технических наук

**Заместитель главного редактора**

Тананаев Иван Гундарович — доктор химических наук, профессор, член-корреспондент РАН

**Редакционная коллегия:**

Аклеев Александр Васильевич — доктор медицинских наук, профессор  
Большаков Владимир Николаевич — доктор биологических наук, профессор, академик РАН  
Большов Леонид Александрович — доктор физико-математических наук, профессор, академик РАН  
Величкин Василий Иванович — доктор геолого-минералогических наук, профессор, член-корреспондент РАН  
Демченко Елена Александровна — кандидат химических наук  
Жуковский Михаил Владимирович — доктор технических наук, профессор  
Иванов Иван Александрович — кандидат технических наук  
Ильин Леонид Андреевич — доктор медицинских наук, профессор, академик РАН  
Калмыков Степан Николаевич — доктор химических наук, профессор, член-корреспондент РАН  
Колупаев Дмитрий Никифорович — кандидат технических наук  
Кошурникова Нина Александровна — доктор медицинских наук, профессор  
Крышев Александр Иванович — доктор биологических наук  
Куваев Андрей Алексеевич — доктор геолого-минералогических наук, доцент  
Линге Игорь Иннокентьевич — доктор технических наук  
Логунов Михаил Васильевич — кандидат технических наук  
Мясоедов Борис Федорович — доктор химических наук, профессор, академик РАН  
Нагорная Марина Григорьевна — кандидат технических наук  
Похлебаев Михаил Иванович — доктор биологических наук, профессор  
Пряхин Евгений Александрович — кандидат биологических наук  
Романов Сергей Анатольевич — доктор медицинских наук  
Сокольников Михаил Эдуардович — доктор биологических наук  
Трапезников Александр Викторович — доктор технических наук  
Уткин Сергей Сергеевич — доктор геолого-минералогических наук, член-корреспондент РАН  
Хомяков Анатолий Павлович — доктор биологических наук, профессор  
Хохряков Валентин Федорович — доктор геолого-минералогических наук, член-корреспондент РАН  
Юдинцев Сергей Владимирович — доктор биологических наук, профессор



***Сведения об авторах статей:***

- |                                |   |
|--------------------------------|---|
| Алдибекова Альбина Есжановна   | – старший инженер экспериментального отдела, т. (351) 2327924, <i>albinaes@gmail.com</i>  |
| Андреев Сергей Сергеевич       | – к.б.н., ведущий инженер экспериментального отдела, т. (351) 2327924, <i>andreevsss@mail.ru</i>  |
| Атаманюк Наталья Игоревна      | – к.б.н., старший научный сотрудник экспериментального отдела УНПЦ РМ, доцент кафедры радиационной биологии ЧелГУ, т. (351) 2327924, <i>vita_pulhra@mail.ru</i> |
| Валова Надежда Игоревна        | – инженер-химик, т. (35130) 36255, <i>Andreevan96@icloud.com</i>  |
| Винокуров Сергей Евгеньевич    | – к.х.н., заведующий лабораторией, т. (495) 9397007, <i>vinokurov.geokhi@gmail.com</i>  |
| Ворошилов Юрий Аркадьевич      | – начальник группы технологической лаборатории ЦЗЛ, т. (35130) 33944, <i>cpl@po-mayak.ru</i>  |
| Ермолин Владимир Станиславович | – инженер-технолог технологической лаборатории ЦЗЛ, т. (35130) 37031, <i>cpl@po-mayak.ru</i>  |
| Козина Юлия Войтеховна         | – инженер-технолог лаборатории специального материаловедения ЦЗЛ, т. (35130) 33954, <i>cpl@po-mayak.ru</i>  |
| Конников Андрей Валерьевич     | – начальник технологической лаборатории ЦЗЛ, т. (35130) 37381, <i>cpl@po-mayak.ru</i>   |
| Кузнецова Наталья Анатольевна  | – начальник группы дезактивации лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 37182, <i>cpl@po-mayak.ru</i>                |
| Куляко Юрий Михайлович         | – д.х.н., главный научный сотрудник, т. (499) 1378265, <i>kulyako@geokhi.ru</i>   |
| Литвинова Марина Андреевна     | – инженер-технолог-коррозионист-исследователь лаборатории специального материаловедения ЦЗЛ, т. (35130) 33476, <i>cpl@po-mayak.ru</i>                           |
| Логунов Михаил Васильевич      | – советник генерального директора, т. (35130) 33100   |
| Лукин Сергей Александрович     | – заместитель начальника ЦЗЛ по науке и технологии, т. (35130) 33992, <i>cpl@po-mayak.ru</i>  |
| Лызлова Евгения Викторовна     | – начальник группы технологической лаборатории ЦЗЛ, т. (35130) 37187, <i>cpl@po-mayak.ru</i>  |

Мокров Кирилл Юрьевич	–	начальник группы лаборатории экологической безопасности ЦЗЛ, т. (35130) 37154, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Мокров Юрий Геннадьевич	–	д.т.н., советник генерального директора по науке и экологии, т. (35130) 33304, <i>mokrov@po-mayak.ru</i>
Мясоедов Борис Федорович	–	д.х.н., академик, главный научный сотрудник, т. (499) 1378691, <i>bf@geokhi.ru</i>
Обвинцева Надежда Александровна	–	научный сотрудник экспериментального отдела, т. (351) 2327924, <i>n_obvintseva@mail.ru</i>
Окatenко Павел Викторович	–	руководитель группы компьютерного и программного обеспечения лаборатории радиационной эпидемиологии, т. (35130) 76903, <i>okatenko@subi.su</i>
Перевалов Сергей Анатольевич	–	к.х.н., старший научный сотрудник, т. (495) 9397043, <i>perevalov@geokhi.ru</i>
Перетыкин Андрей Анатольевич	–	старший инженер экспериментального отдела, т. (351) 2327924, <i>engineer_eo@mail.ru</i>
Пилушенко Константин Сергеевич	–	младший научный сотрудник, т. 8 9251248756, <i>kostjt@mail.ru</i>
Пряхин Евгений Александрович	–	д.б.н., профессор, заведующий экспериментальным отделом, т. (351) 2327925, <i>pryakhin@urcrm.ru</i>
Стяжкина Елена Владимировна	–	к.б.н., старший научный сотрудник экспериментального отдела УНПЦ РМ, доцент кафедры радиационной биологии ЧелГУ, т. (351) 2327924, <i>yelena-st@mail.ru</i>
Трофимов Трофим Иванович	–	научный сотрудник, т. (495) 9397081, <i>trofimov@geokhi.ru</i>
Тряпицына Галина Александровна	–	д.б.н., ведущий научный сотрудник экспериментального отдела УНПЦ РМ, профессор кафедры радиационной биологии ЧелГУ, т. (351) 2327925, <i>tga28@mail.ru</i>
Харлова Александра Георгиевна	–	ведущий инженер-технолог технологической лаборатории ЦЗЛ, т. (35130) 37179, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Царёва Юлия Вячеславовна	–	к.мед.н., научный сотрудник лаборатории радиационной эпидемиологии, т. (35130) 75629, <i>tsareva@subi.su</i>
Шапошникова Ирина Александровна	–	к.б.н., старший научный сотрудник экспериментального отдела, т. (351) 2327924, <i>shaposhnikova@lenta.ru</i>

---

**СОДЕРЖАНИЕ ЖУРНАЛА  
ЗА 2021 ГОД**

<b>Содержание</b>	<b>Номер</b>
<b>Поздравления</b>	1
<b>1. ОБЩИЕ ВОПРОСЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ</b>	
<b>Сотник Н.В., Шабуров С.Ю., Гринь Н.А., Демченко Е.А., Семёнов М.А., Волкова Л.П.</b> Опыт использования метода атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно-связанной плазмой на ПО "Маяк"	1
<b>2. ОБРАЩЕНИЕ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ</b>	
<b>Федосеев А.М., Мясоедов Б.Ф., Шилов В.П.</b> Зависимость кинетики реакций актинидов и лантанидов от их окислительных потенциалов	1
<b>Самойлов А.А., Стрижова С.В., Блохин П.А., Александрова Т.А.</b> Актуальные потребности развития санитарно-гигиенического нормирования в контексте деятельности по совершенствованию системы обращения с РАО	2
<b>Парфентьева К.Е., Ворошилов Ю.А., Конников А.В., Лукин С.А., Бугров К.В., Грачёв А.А., Туманов В.В., Стороженко П.А.</b> Изучение свойств экстракционных систем на основе фосфиноксидов	2
<b>Богатов С.А., Блохин П.А., Уткин С.С., Дорофеев А.Н., Киселёв А.И., Козлов П.В., Лукин С.А., Ремизов М.Б., Семёнов М.А.</b> Усреднённые оценки удельной активности и тепловыделения остеклованных высокоактивных отходов, накопленных на ФГУП "ПО "Маяк"	3
<b>Рыбин А.А., Серебряков В.В., Узиков В.А.</b> Методологические аспекты контроля выбросов радиоактивных веществ в атмосферу из башенных градирен ядерных реакторных установок	3
<b>Слюнчев О.М., Ремизова В.А., Бобров П.А.</b> Исследование возможности цементирования смешанной пульпы гидроксида железа и диоксида марганца, содержащей $\alpha$ -излучающие радионуклиды	3
<b>Козина Ю.В., Кузнецова Н.А., Валова Н.И.</b> Изучение эффективности ультразвуковой дезактивации в присутствии экранирующих материалов	4
<b>3. РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ</b>	
<b>Харлова А.Г., Лызлова Е.В., Конников А.В., Литвинова М.А.</b> Исследование процесса выщелачивания боросиликатных стёкол для радионуклидных источников с целью оценки радиационного воздействия на химическую стойкость стекла при длительном хранении	4

Содержание	Номер
<b>4. РАДИОХИМИЧЕСКАЯ ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОЯТ</b>	
Алой А.С., Абашкин А.Ю., Карпович Н.Ф., Кольцова Т.А., Красников Л.В., Мурзин А.А., Пузанская Е.А., Самойлов С.Е., Ушакова К.В., Щукин В.С. Исследование процесса термохимической денитрации азотнокислых растворов актинидов в вертикальном тонкоплёночном аппарате	3
Ермолин В.С., Логунов М.В., Ворошилов Ю.А., Конников А.В., Лукин С.А. Обзор существующих технологий растворения уран-циркониевого ОЯТ	4
Куляко Ю.М., Трофимов Т.И., Перевалов С.А., Пилюшенко К.С., Винокуров С.Е., Мясоедов Б.Ф. Получение керамических уран-оксидных топливных композиций под воздействием СВЧ излучения	4
<b>5. РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ И ОКРУЖАЮЩАЯ СРЕДА</b>	
Нипрук О.В., Черноруков Н.Г., Клиньшова К.А., Соколов Д.В., Назмутдинов М.Д. Уранофосфаты и ураноарсенаты одновалентных элементов как формы связывания урана в природной среде и различных технологических процессах	1
Мокров К.Ю., Мокров Ю.Г. Анализ результатов мониторинга загрязнения атмосферы $^{90}\text{Sr}$ и $^{137}\text{Cs}$ в районе ФГУП "ПО "Маяк" за 2000–2019 годы	1
Косых И.В., Крышев А.И., Крышев И.И. Оценка показателей техногенного радиационного фона по данным многолетнего мониторинга поверхностных вод в районе Белоярской АЭС	1
Довгий И.И., Бежин Н.А., Капранов С.В. Определение стронция в объектах окружающей среды с использованием сорбента на основе ди-трет-бутилдициклогексил-18-краун-6	2
Мокров К.Ю., Мокров Ю.Г. Реконструкция плотности выпадений $^{90}\text{Sr}$ и $^{137}\text{Cs}$ в районе расположения ФГУП "ПО "Маяк" за период 1950–2020 гг. (на примере пос. Новогорный)	2
Беденко С.В., Кусков В.А., Сабитова Р.Р., Власкин Г.Н. Моделирование сборки формирования пучка нейтронов для мониторинга влажности почвы	2
Мокров Ю.Г., Мокров К. Ю. Особенности формирования радиационной обстановки в прибрежных районах реки Теча на примере Метлинского пруда	4
<b>6. ОБЛУЧЕНИЕ И ЗДОРОВЬЕ ЧЕЛОВЕКА</b>	
Сотник Н.В., Рыбкина В.Л., Осовец С.В., Азизова Т.В. Биологические маркеры профессионального облучения работников ПО "Маяк"	1
Атаманюк Н.И., Пряхин Е.А., Андреев С.С., Алдибекова А.Е., Тряпицына Г.А., Шапошникова И.А., Стяжкина Е.В., Обвинцева Н.А., Завьялов Е.Л., Долгушина В.Ф., Долгушин И.И., Шерстобитов А.В., Аклеев А.В. Использование ксенотрансплантации гемопоэтических клеток человека, выделенных из периферической	

Содержание	Номер
крови взрослых людей и пуповинной крови, иммунодефицитным мышам для изучения действия ионизирующего излучения	1
<b>Рабинович Е.И., Поволоцкая С.В., Васина М.А.</b> Органический состав мочи у работников тритиевого производства ПО "Маяк"	2
<b>Тельнов В.И.</b> Сокращение продолжительности здоровой жизни до диагностики злокачественных новообразований у работников ПО "Маяк" при инкорпорации $^{239}\text{Pu}$	2
<b>Соколова А.Б., Ефимов А.В.</b> Декорпорация плутония: эффективность отложенной хелатотерапии в случаях острого поступления через поврежденные покровы кожи у работников ПО "Маяк"	2
<b>Рабинович Е.И., Поволоцкая С.В.</b> Типы атрофического гастрита у работников ПО "Маяк" и жителей г. Озёрска	2
<b>Финашов Л.В., Кузнецова И.С., Сокольников М.Э.</b> Курение как фактор риска заболеваемости раком предстательной железы у мужчин когорты ПО "Маяк"	3
<b>Сокольников М.Э., Кошурникова Н.А., Юркин А.М., Мартиненко И.А., Денисова Е.В., Царева Ю.В., Ефимов А.В., Окатенко П.В., Кабирова Н.Р.</b> Заболеваемость солидными раками (без учёта раков лёгкого, печени и скелета) в когорте работников ПО "Маяк", 1948–2017 гг.	3
<b>Шишкина Е.А., Шарагин П.А., Волчкова А.Ю.</b> Аналитическое описание дозообразования в костном мозге от $^{90}\text{Sr}$ , инкорпорированного в кальцифицированных тканях	3
<b>Атаманюк Н.И., Стяжкина Е.В., Обвинцева Н.А., Тряпицына Г.А., Шапошникова И.А., Андреев С.С., Алдибекова А.Е., Перетыкин А.А., Пряхин Е.А.</b> Кинетика гибели и восстановления клеток костного мозга у мышей двух линий с разной радиочувствительностью после острого $\gamma$ -облучения	4
<b>Царева Ю.В., Окатенко П.В.</b> Оценка канцерогенного риска злокачественных опухолей пищеварительной системы в когорте внутриутробно облучённых детей	4
<b>7. НАША РЕКЛАМА</b>	
Региональный центр облучательных технологий	1
Региональный центр облучательных технологий	2
<b>8. ИНФОРМАЦИЯ И ПЕРСОНАЛИИ</b>	
Анонс XI Российской научной конференции "Радиационная защита и радиационная безопасность в ядерных технологиях"	1
Дрожко Е.Г. – 75 лет	3



Светлой памяти учёного и наставника	3
Глаголенко Юрию Васильевичу – 75 лет	4
Кошурниковой Нине Александровне – 95 лет	4

## ПРАВИЛА ОФОРМЛЕНИЯ СТАТЕЙ

Все материалы представляются в редакцию в бумажном или электронном виде (в виде файлов на диске или переданных по электронной почте).

1. Для публикации статьи авторам необходимо представить в редакцию следующие материалы и документы:

- экспертное заключение;
- подписанный всеми авторами текст статьи, включая аннотацию на русском и английском языках, таблицы, рисунки и подписи к ним (скан листа с подписями авторов);
- файлы всех представленных материалов на диске или по электронной почте;
- **сведения о каждом из авторов: фамилия, имя, отчество полностью; учёная степень; должность; название и адрес организации; e-mail; телефон (указать автора, ответственного за переписку с редакцией).** Эти сведения вставляются в журнал.

Объём статьи – не более 15-20 машинописных страниц. В случае необходимости статья может быть разделена на части и опубликована последовательно в ряде номеров. В течение месяца с момента получения рукописи статьи редакция официально сообщает авторам о своем решении относительно ее публикации. В случае положительного решения, за месяц до выхода в свет номера журнала, редакция посылает автору для проверки сверстаный текст статьи в формате Adobe Acrobat. Изменения и дополнения в верстке не допускаются. Если автор по не зависящим от редакции причинам не подписал в печать верстку статьи в указанный в сопроводительном письме срок, редакция оставляет за собой право подписи статьи в печать.

Все статьи публикуются бесплатно.

### 2. Структура статьи

Статья начинается с индекса **УДК**, затем следует ее **заглавие, инициалы и фамилии авторов, местонахождение (страна, город) и название организации.** Далее идут **аннотация** (объёмом до 1/3 машинописной страницы), **ключевые слова** (не более 10) и **текст статьи.**

На отдельной странице приводится **полностью соответствующий русскому тексту** перевод на английский язык: инициалы и фамилии авторов, названия научных учреждений, заглавие, ключевые слова, аннотация.

В конце работы приводится список литературы, который должен быть оформлен в соответствии с ГОСТ Р 7.0.5–2008. Требования нового ГОСТа не противоречат требованиям к оформлению списка литературы в нашем журнале. НЕ забывайте указывать общее число страниц монографий и номера страниц статьи!

*Пример:*

1. Меньших Т.Б., Никитина Л.В. Цезий-137 и стронций-90 в водной растительности водоема В-3 ТКВ // Вопросы радиац. безопасности. – 2007. – № 2. – С. 59–65.

2. Napier B.A. A Re-evaluation of the <sup>131</sup>I Atmospheric Releases from the Hanford Site // Health Physics. – August, 2002. – V. 83. – № 2. – P. 204–226.

3. Круглов А.К. Как создавалась атомная промышленность в СССР. – 2-е изд., с испр. – М.: ЦНИИатоминформ, 1995. – 380 с.

### 3. Требования к электронной версии статьи

Электронная и бумажная версии статьи должны быть идентичны. При подготовке материалов для журнала с использованием компьютера рекомендуются следующие программы и форматы файлов:

**Текстовые редакторы:** Microsoft Word for Windows. Текст статьи набирается с соблюдением следующих правил:

- набор текста шрифтом **Times New Roman** размером **12–13** через **1,5** интервала;
- набирать текст **без принудительных переносов**;
- разрядки слов не допускаются;
- уравнения, схемы, таблицы, рисунки и ссылки на литературу нумеруются **в порядке их упоминания в тексте**. Нумеровать следует лишь те формулы и уравнения, на которые даются ссылки в тексте;
- в числовых значениях **десятичные разряды отделяются запятой**;
- вставка символов шрифтом **Symbol**.

**Графические материалы:** *Растровые рисунки* должны сохраняться и обрабатываться только в форматах TIFF, JPG с разрешением 300 dpi для фотографий и не менее 600 dpi для остальных рисунков (черно-белый). Использование других форматов нежелательно.

**Векторные рисунки** (не диаграммы) должны предоставляться в формате программы, в которой они созданы: **CorelDraw, Excel**. Если использованная программа не является распространенной, необходимо дополнительно сохранить файлы рисунков в формате Enhanced Windows Metafile (**EMF**) или Windows Metafile (**WMF**).

*Диаграммы:* Рекомендуется использовать Microsoft Excel.

НАУЧНО-ПРАКТИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ  
Федерального государственного унитарного предприятия  
"ПРОИЗВОДСТВЕННОЕ ОБЪЕДИНЕНИЕ "МАЯК"  
**ВОПРОСЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ**  
**№ 4 (104) 2021**

Технический редактор И.Н. Моисеева

Переводчики: О.А. Константинова, Е.В. Лупеха

Корректоры: Н.П. Подольская, О.А. Константинова, Е.В. Лупеха, Д.Ю. Сезонова

*ПОДПИСКА – 2022*

**С сентября 2021 г. на сайте "Почта России" проводится  
подписная кампания на январь - июнь 2022 года  
по электронному каталогу.**

**ЖУРНАЛ**

**"Вопросы радиационной безопасности"**

**основной индекс ПН083.**

Учредитель: Федеральное государственное унитарное предприятие "Производственное объединение "Маяк"  
Свидетельство о регистрации средства массовой информации ПИ № ФС77-21316 от 22 июня 2005 г. выдано Федеральной  
службой по надзору за соблюдением законодательства в сфере массовых коммуникаций и охране культурного наследия.  
Адрес издателя: Россия, 456780, Челябинская обл., г. Озёрск, ул. Ленина, 31  
Адрес редакции: Россия, 456780, Челябинская обл., г. Озёрск, ул. Ермолаева, 18  
Тел. (35130) 33081; e-mail: [vrb@cpl.po-mayak.ru](mailto:vrb@cpl.po-mayak.ru)  
Address: 18, Ermolayev st., Ozyorsk, 456780, Russia  
Tel. (35130) 33081; e-mail: [vrb@cpl.po-mayak.ru](mailto:vrb@cpl.po-mayak.ru)

Подписано в печать 30.12.2021

Тираж 80 экз.

Выход в свет 24.01.2022

Отпечатано в полиграфическом участке ФГУП "ПО "Маяк"