

# 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 (112) 2023 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, С.Н. Калмыков,  
П.В. Козлов, Д.Н. Колупаев, Н.А. Кошурникова, А.И. Крышев, А.А. Куваев,  
И.И. Линге, М.В. Логунов, Б.Ф. Мясоедов, В.Н. Позолотина, Е.А. Пряхин,  
С.А. Романов, М.Э. Сокольников, Е.И. Толстых, С.С. Уткин, А.П. Хомяков,  
Е.А. Шишкина, С.В. Юдинцев, Ю.Т. Юлдашев

## СОДЕРЖАНИЕ

### 1. РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ

- Козина Ю.В., Истомин И.А., Кузнецова Н.А., Валова Н.И., Снегирёва М.А.  
Лазерная дезактивация металлических радиоактивных отходов 3
- Сахненко О.А., Кузнецова Н.А., Пипков Е.В., Габбасова Н.Р. Результаты  
исследования дезактивирующей способности моющих средств серии "Выбор"  
в условиях радиохимического производства 12

### 2. ОБРАЩЕНИЕ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ

- Елагина Л.Г., Ремизов М.Б., Козлов П.В., Дементьева И.И. Разработка  
автоматизированной базы данных для создания методических основ системы  
характеризации остеклованных ВАО, накопленных на ФГУП "ПО "Маяк" 20
- Козлов П.В., Шайдуллин С.М., Ахтямов Р.Я., Ахмедьянов Р.М., Феоктистов К.А.,  
Маркова Д.В. Исследование перспективных составов сухой смеси для цементирования  
растворной части накопленных щелочных высокоактивных отходов 28
- Еремышев В.Е., Кориневская Г.Г., Рассомахин М.А., Живулин Д.Е.,  
Шайдуллин С.М., Козлов П.В. Исследование максимальной растворимости циркония  
в алюмоборосиликатных стёклах 41

### 3. РАДИОХИМИЧЕСКАЯ ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОЯТ

- Корнилов А.С., Погляд С.С., Позигун Н.О., Болдаков В.А., Дмитриева О.С.,  
Москальцова В.А. Резэкстракция урана ацетатом и формиатом аммония 50

## СОДЕРЖАНИЕ

### 4. РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ И ОКРУЖАЮЩАЯ СРЕДА

**Мокров Ю.Г.** Распределение циркония-95 в донных отложениях реки Течи в 1952–1955 годах 55

**Мокров Ю.Г.** Радиоактивное загрязнение прибрежных участков в результате уноса водного аэрозоля с акватории реки Течи 69

### 5. ОБЛУЧЕНИЕ И ЗДОРОВЬЕ ЧЕЛОВЕКА

**Кузнецова И.С.** Радиогенный риск смерти от злокачественных новообразований среди работников, нанятых в разные периоды деятельности ПО "Маяк" 82

### 6. ИНФОРМАЦИЯ И ПЕРСОНАЛИИ

**Ильин Л.А.** 90

**Хохряков В.Ф.** 92

Радиоохимическому заводу – 75 лет 93

Новые книги 94

**CONTENTS** 95

**ABSTRACTS** 97

**Сведения об авторах статей** 101

**Содержание журнала за 2023 год** 104

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

© 2023

## ЛАЗЕРНАЯ ДЕЗАКТИВАЦИЯ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

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

Исследована возможность дезактивации металлических радиоактивно загрязнённых поверхностей с использованием лазерной обработки. В результате проведённой работы установлено, что применение лазерной обработки позволяет перевести металлические отходы из категории НАО в категорию ОНАО. Показано, что для предотвращения загрязнения радиоактивными аэрозолями рабочей зоны и оборудования целесообразно использовать локальную систему газоочистки.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ДЕЗАКТИВАЦИЯ, КОЭФФИЦИЕНТ ДЕЗАКТИВАЦИИ, РАДИОАКТИВНОЕ ЗАГРЯЗНЕНИЕ, ЛАЗЕРНАЯ ОЧИСТКА ПОВЕРХНОСТЕЙ, ПАРАМЕТРЫ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

В результате деятельности АЭС и радиохимических заводов, проведения ежегодных профилактических и ремонтных работ накапливается существенное количество отработавших свой ресурс радиационно загрязнённых металлоконструкций, узлов и элементов, выполненных из различных металлов и сплавов, в том числе дорогостоящих. Более 90 % всех радиоактивно загрязнённых объектов имеют поверхностные загрязнения. Как правило, радионуклиды располагаются в поверхностном слое металла толщиной несколько десятков микрон.

Несмотря на большое количество современных методов дезактивации металлических радиоактивных отходов, практически все из них требуют присутствия персонала в месте проведения работ, а также приводят к образованию разного количества вторичных жидких и твёрдых радиоактивных отходов (далее – РАО).

Особое внимание следует уделить выведенному из эксплуатации оборудованию, имеющему локальные радиоактивные загрязнения. Именно для дезактивации такого оборудования целесообразно использовать "сухие" малоотходные методы дезактивации.

Одним из перспективных современных методов дезактивации металлических РАО является обработка загрязнённой металлической поверхности лазерным излучением. Как известно, пучок лазера является универсальным

технологическим инструментом, обладающим уникально высокими удельными энергетическими характеристиками для обработки материалов. Лазерная очистка включает применение короткоимпульсного (наносекундного) лазера с большой пиковой мощностью (до нескольких мегаватт) и открывает возможность испарения любых материалов, в том числе радиоактивных [1].

Долгое время в России лазерная дезактивация носила в основном экспериментальный характер. Главной причиной этого являлась низкая производительность процесса: в зависимости от мощности излучения, скорости перемещения луча и оптического разрешения для очистки 1 м<sup>2</sup> требовалось от 2,5 ч до нескольких суток. Однако современные технологии производства лазеров позволили создать довольно мощные стационарные и мобильные установки, например, ООО "ИРЭ-Полнос", ОКБ "Булат", ООО "Поккельс" и др. Производительность данных установок позволит им конкурировать с другими методами дезактивации.

Конкурентными преимуществами лазерной дезактивации являются также экологическая безопасность, отсутствие расходных материалов, высокая технологическая воспроизводимость процесса, а также возможность комплексно решать проблему очистки поверхности, удаляя одновременно как органические, так и неорганические загрязнения. Указанные

преимущества открывают широкие потенциальные возможности внедрения данной технологии в радиохимическое производство.

Для оценки применимости лазерной обработки металлических поверхностей в качестве метода дезактивации на радиохимическом производстве была проведена исследовательская работа. Целью данной работы являлась разработка режимов обработки сфокусированным лазерным излучением металлических поверхностей оборудования и конструкционных материалов для удаления радиоактивного загрязнения, находящегося на поверхности и в приповерхностном слое металла. Разработанные режимы в дальнейшем могут быть использованы на действующем производстве, прежде всего, для удаления локальных радиоактивных загрязнений.

Все исследования проводились на системе прецизионной лазерной маркировки (далее – СПЛМ) "МиниМАРКЕР 2ТМ-М20" производства ООО "Лазерный Центр", г. Санкт-

Петербург. Система представляет собой моноблочную сборную конструкцию, общий вид и технические характеристики которой представлены на рис. 1 и приведены в табл. 1.

Для проведения исследований была разработана и изготовлена специальная внутренняя дезактивационная камера из органического стекла, позволяющая осуществлять дезактивацию загрязнённых образцов через прозрачную перегородку. Внутренняя камера была оснащена системой локальной газоочистки с двумя последовательно установленными фильтрами ФА-РМП-20 для улавливания радиоактивных аэрозолей и продуктов деструкции металла. После выполнения каждой серии экспериментов проводился радиационный контроль обоих фильтров. Радиоактивное загрязнение второго фильтра отсутствовало, что свидетельствует об эффективной очистке воздушного пространства внутренней камеры от радиоактивных аэрозолей. В пределах погрешности измерения радиометрического прибора сумма остаточного



1 – рабочий стол оператора с интегрированным источником лазерного излучения, блоками питания и управления; 2 – ось Z вертикального перемещения маркировочной головки (моторизована); 3 – лазерная головка; 4 – защитная кабина; 5 – газозвод на систему газоочистки

Рис. 1. Общий вид установки СПЛМ "МиниМАРКЕР 2-М20" в компоновке "Моноблок с кабиной"

Таблица 1

Основные технические характеристики СПЛМ "МиниМАРКЕР 2-М20"

Показатель	Единицы измерений	Значение
Лазер		
Тип	Иттербиевый импульсный волоконный серии YLP-1-100-20-YS-RG	
Тип накачки	Полупроводниковая	
Длина волны излучения	нм	1064
Максимальная выходная мощность	Вт	20
Частота следования импульсов	кГц	Регулируемая, от 20 до 100 включ.
Длительность импульсов	нс	От 100 до 110
Общие характеристики		
Тип системы перемещения луча	Сканаторная	
Размер зоны обработки	мм	100 × 100
Диаметр пятна лазера в фокальной плоскости (номинал)	мкм	55
Глубина фокусировки (каустики) луча	мм	3,0
Максимальная скорость перемещения луча	мм/с	8750
Охлаждение	Автономное воздушное	

радиоактивного загрязнения образца и фильтра соответствовала исходному радиоактивному загрязнению образца.

Таким образом, использование камеры существенно повысило безопасность процесса дезактивации, включая защиту персонала и лазерного оборудования от аэрозольных частиц радионуклидов.

Для проведения исследований были изготовлены образцы размером 25×25 мм из следующих конструкционных материалов (листовой прокат):

- нержавеющая сталь марки 12Х18Н10Т;
- углеродистая сталь марки Ст3.

Для радиоактивного загрязнения образцов обоих конструкционных материалов использовали азотнокислые растворы, содержащие следующие радиоактивные изотопы:

- $^{241}\text{Am}$  в качестве  $\alpha$ -излучателя,
- $^{90}\text{Sr}$  в качестве  $\beta$ -излучателя.

Загрязнение образцов осуществляли капельным методом. С помощью пипетки-дозатора в центр образца наносили аликвоту раствора, содержащего радионуклиды. Затем для увеличения адгезии и сорбции радионуклидов

на поверхности металла образцы высушивали под лампой в течение 20 мин, охлаждали на воздухе и измеряли значение исходного уровня поверхностного радиоактивного загрязнения. Объем аликвоты наносимых растворов рассчитывали таким образом, чтобы загрязнённые образцы можно было отнести к категории низкоактивных отходов в соответствии с критериями классификации твёрдых РАО по уровню поверхностного радиоактивного загрязнения [2], т.е. уровни радиоактивного загрязнения должны были находиться в пределах:

- от  $10^2$  до  $10^3$   $\alpha$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ),
- от  $10^3$  до  $10^4$   $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ).

Радиоактивное загрязнение наносили как под покрытие (для одной группы образцов обоих конструкционных материалов), так и на его поверхность (для другой группы образцов). В качестве органических покрытий использовали алкидную эмаль, битумный праймер, технологическую смазку ЦИАТИМ. Также была подготовлена группа образцов из нержавеющей стали, повреждённых питтинговой коррозией, и группа образцов из углеродистой стали с окисными отложениями на поверхности.

На протяжении всего исследования для удобства в качестве величины радиоактивного загрязнения использовали уровень поверхностного загрязнения в соответствии с разработанными для ФГУП "ПО "Маяк" методическими указаниями [2], поскольку данную величину легко измерить с помощью имеющихся средств измерений.

Измерения уровня поверхностного радиоактивного загрязнения образцов проводили с помощью дозиметра-радиометра МКС-АТ 1117М. Эффективность дезактивации оценивали по величине коэффициента дезактивации, выраженного отношением исходного уровня поверхностного радиоактивного загрязнения к остаточному.

Режимы дезактивации подбирали опытным путём. В процессе работы было установлено, что для качественного удаления загрязнения требуется провести несколько обработок (проходок) одного и того же участка. Первые проходки (от 1 до 6) являются определяющими эффективность дезактивации, поскольку снимают поверхностный слой вместе с радиоактивным загрязнением, а завершающая (финишная) – устраняет следы воздействия на поверхность, полученные во время первых проходок. Оптимальные с точки зрения эффективности и времени обработки режимы, позволяющие полностью удалить находящиеся на поверхности отложения и покрытия, приведены в табл. 2.

Результаты экспериментов по дезактивации загрязнённых радионуклидами нержавеющей и углеродистой сталей приведены в табл. 3.

На основании представленных в табл. 3 результатов можно сделать вывод о достаточно высокой степени дезактивации: значения коэффициентов дезактивации составляют от 12,1 до 31,4. Коэффициенты дезактивации конструкционных материалов от  $\beta$ -излучающих радионуклидов в среднем в 1,5–2 раза выше по сравнению с  $\alpha$ -радионуклидами. Остаточные уровни радиоактивного загрязнения обработанных лазером конструкционных материалов позволяют не считать их радиоактивными отходами, поскольку их значения ниже нормативных, относящихся к категории очень низкоактивных отходов (далее – ОНАО). Уровень поверхностного радиоактивного загрязнения для твёрдых РАО категории ОНАО в соответствии

с [2] составляет от 50 до 100 част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ) для  $\alpha$ -излучающих радионуклидов и от 500 до 1000 част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ) для  $\beta$ -излучающих радионуклидов. В соответствии с критерием классификации ТРО по удельной активности дезактивированные образцы относятся к категории ОНАО: удельная активность  $\beta$ -излучающих нуклидов — до  $10^3$  Бк/г, удельная активность  $\alpha$ -излучающих нуклидов — до  $10^2$  Бк/г, удельная активность трансурановых радионуклидов – до 10 Бк/г [2].

Также была исследована зависимость эффективности дезактивации от количества обработок по первому режиму. Полученные результаты приведены в табл. 4.

Из приведённых данных видно, что увеличение количества проходок по первому режиму приводит к повышению суммарного коэффициента дезактивации как для углеродистой, так и для нержавеющей сталей. Данная тенденция закономерна, т. к. увеличение количества проходок приводит к увеличению толщины удаляемого слоя с поверхности конструкционных материалов, тем самым повышая вероятность удаления глубинных радиоактивных загрязнений. Однако, как следует из приведённых на рис. 2 графиков, полностью удалить  $\alpha$ - и  $\beta$ -излучающие нуклиды с очищаемой поверхности не удалось. Остаточные уровни поверхностного загрязнения не достигли нулевых значений. Данный результат может быть связан с несовершенством системы аэрозольной очистки внутренней рабочей камеры.

В процессе работы также была изучена возможность лазерной дезактивации нержавеющей стали с коррозионными повреждениями в виде питтингов (точечных язв), в которых могут накапливаться загрязнения различной природы, в том числе содержащие радиоактивные вещества. Стандартные химические методы дезактивации в этом случае малоэффективны, т. к. приводят к значительному повреждению материала, не удаляя радиоактивные вещества из питтингов.

Результаты экспериментов приведены в табл. 5. Низкие исходные уровни радиоактивного загрязнения  $\alpha$ -излучающими радионуклидами углеродистой стали с окисными отложениями на поверхности объясняются эффектом поглощения излучения слоем окислов железа.



Таблица 2

Режимы лазерной обработки для удаления радиоактивного загрязнения конструкционных материалов, размещённых во внутренней рабочей камере

Конструкционный материал	Тип загрязнения или покрытия	Параметры лазерной обработки			Количество проходов
		Частота, кГц	Мощность, Вт	Скорость, мм/с	
Углеродистая сталь Нержавеющая сталь	Без технологических загрязнений, покрытий и отложений	20	20	400	1
		100	10	600	1
Углеродистая сталь Нержавеющая сталь	Битумный праймер	20	20	400	от 2 до 4
		100	20	400	1
		100	10	2500	1
Углеродистая сталь Нержавеющая сталь	Алкидная эмаль ПФ-115	20	20	400	от 3 до 6
		100	20	400	1
		100	10	2500	1
Углеродистая сталь	Окисные отложения	20	20	200	от 1 до 2
		20	10	400	1
Нержавеющая сталь	Питтинговая коррозия	20	20	200	от 1 до 2
		100	10	600	1
Углеродистая сталь Нержавеющая сталь	ЦИАТИМ	20	20	400	от 1 до 2
		100	20	400	1
		20	10	400	1

Таблица 3

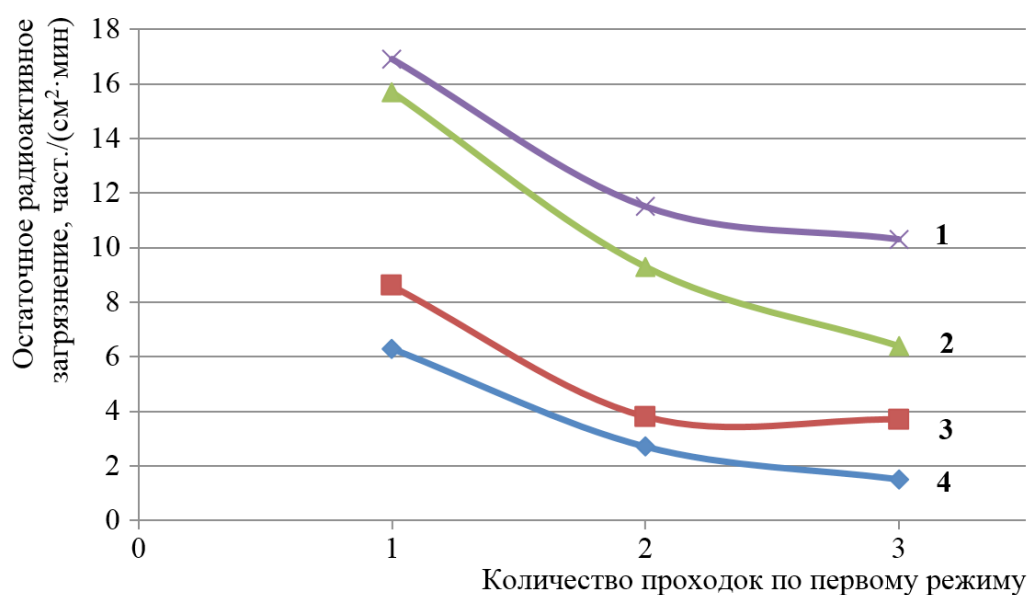
Результаты лазерной дезактивации образцов конструкционных материалов, не имеющих технологических загрязнений и покрытий

Конструкционный материал	Тип радиоактивного загрязнения	Уровень радиоактивного загрязнения, част./(см <sup>2</sup> ·мин)		Коэффициент дезактивации
		исходный	остаточный	
Нержавеющая сталь	α	170 ± 20	14 ± 5	12,1
	β	1550 ± 103	59 ± 13	26,3
Углеродистая сталь	α	160 ± 20	8 ± 4	20,0
	β	1600 ± 110	51 ± 13	31,4

Таблица 4

Зависимость эффективности дезактивации конструкционных материалов от количества проходов по первому режиму

Вид радиоактивного загрязнения	Конструкционный материал	Коэффициент дезактивации после		
		одной проходы	двух проходов	трёх проходов
α	Нержавеющая сталь	7,4	14,1	23,1
	Углеродистая сталь	12,1	25,1	45,2
β	Нержавеющая сталь	17,7	27,8	45,6
	Углеродистая сталь	21,2	66,9	73



1 – остаточное загрязнение нержавеющей стали  $\beta$ -излучающими нуклидами; 2 – остаточное загрязнение углеродистой стали  $\beta$ -излучающими нуклидами; 3 – остаточное загрязнение нержавеющей стали  $\alpha$ -излучающими нуклидами; 4 – остаточное загрязнение углеродистой стали  $\alpha$ -излучающими нуклидами

Рис. 2. Зависимость остаточного радиоактивного загрязнения конструкционных материалов от количества проходов по первому режиму лазерной обработки

Таблица 5

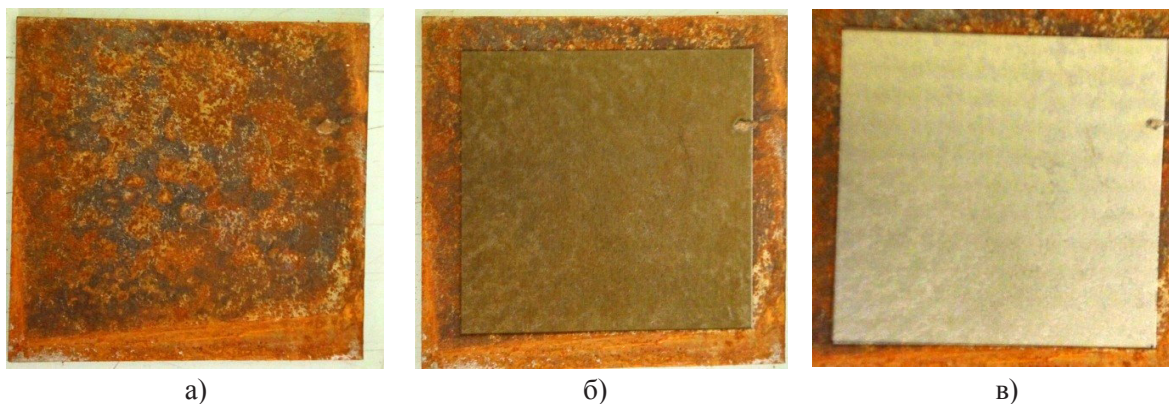
Результаты лазерной дезактивации образцов из углеродистой и нержавеющей стали со следами коррозии при различном количестве проходов по первому режиму

Конструкционный материал и тип отложений	Тип радиоактивного загрязнения	Количество проходов по первому режиму	Уровень радиоактивного загрязнения, част./см <sup>2</sup> ·мин		Коэффициент дезактивации
			исходный	остаточный	
Окисные отложения (ржавчина) на углеродистой стали	$\alpha$	1	41 ± 6	8 ± 4	5,1
		2	53 ± 7	6 ± 3	8,8
	$\beta$	1	1570 ± 110	120 ± 20	13,1
		2	1660 ± 120	63 ± 13	26,4
Питтинговая коррозия на нержавеющей стали	$\alpha$	1	172 ± 21	13 ± 7	13,2
		2	142 ± 18	8 ± 3	17,8
	$\beta$	1	1630 ± 120	135 ± 20	12,1
		2	1510 ± 101	65 ± 12	23,2

На основании полученных результатов можно сделать вывод, что эффективность дезактивации конструкционных материалов с окисными отложениями и коррозионными повреждениями, как и в случае их отсутствия,

определяется количеством проходов. В целом, как и при дезактивации сталей без каких-либо отложений на поверхности, повторная проходка по первому режиму увеличивает коэффициент дезактивации в среднем в 2 раза. Изменение





а) вид образца перед дезактивацией; б) вид образца после одной проходки (мощность 20 Вт, частота 20 кГц, скорость 200 мм/с); в) вид образца после второй проходки (мощность 10 Вт, частота 20 кГц, скорость 400 мм/с)

Рис. 3. Изменение внешнего вида образца углеродистой стали с окисными отложениями в процессе лазерной дезактивации

внешнего вида образца углеродистой стали с окисными отложениями в процессе лазерной дезактивации представлено на рис. 3.

В процессе деятельности предприятий атомной отрасли довольно часто возникает проблема дезактивации поверхностей, имеющих какие-либо органические покрытия, например, окрашенные алкидными эмалями транспортные контейнеры для перевозки облучённого ядерного топлива и др. Существующие методы дезактивации не позволяют полностью удалить покрытия, адсорбировавшие на своей поверхности радионуклиды. В результате приходится дочищать такие поверхности вручную, что приводит к увеличению трудозатрат. Лазерная дезактивация лишена подобных недостатков, поскольку удаляет органические покрытия вместе с радиоактивными веществами. Результаты экспериментов по дезактивации конструкционных материалов с органическими покрытиями на поверхности приведены в табл. 6 и 7.

Из приведённых в табл. 6 и 7 результатов можно сделать вывод об эффективной дезактивации конструкционных материалов с использованием лазерного излучения как от  $\alpha$ -, так и  $\beta$ -излучающих радионуклидов. При этом отмечено, что остаточные уровни поверхностного радиоактивного загрязнения всех исследованных материалов и покрытий составляют величину ниже нижней границы категории отходов ОНАО, как и в случае дезактивации

конструкционных материалов без покрытий.

В процессе работы также была проведена серия экспериментов по дезактивации конструкционных материалов, на которые радиоактивные вещества были нанесены под органические покрытия и смазочные материалы. Для дезактивации использовали те же режимы лазерной обработки, что и для образцов с загрязнениями на поверхности покрытий. Результаты экспериментов приведены в табл. 8 и 9.

Из приведённых в табл. 8 и 9 результатов следует, что лазерная дезактивация конструкционных материалов эффективна, независимо от расположения (глубины нахождения) радионуклидов внутри покрытий. Однако коэффициенты дезактивации при удалении радиоактивных веществ из-под покрытий несколько ниже по сравнению с удалением загрязнения с поверхности лакокрасочных покрытий. Величины остаточного загрязнения поверхностей конструкционных материалов в зависимости от типа радиоактивного загрязнения и покрытия приведены на рис. 4 и 5.

Из приведённых на рис. 4 и 5 данных следует, что дезактивация конструкционных материалов более эффективна при нахождении радиоактивных веществ на поверхности покрытий. При этом, независимо от нахождения радиоактивных веществ относительно покрытий, уровни остаточного радиоактивного загрязнения не превышали

Таблица 6

Результаты лазерной дезактивации образцов из нержавеющей стали  
(радиоактивное загрязнение нанесено на органические покрытия)

Вид покрытия	Тип радиоактивного загрязнения	Уровень радиоактивного загрязнения, част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ )		Коэффициент дезактивации
		исходный	остаточный	
Эмаль ПФ-115	$\alpha$	$126 \pm 15$	$1,1 \pm 1,0$	115
	$\beta$	$1530 \pm 100$	$7,4 \pm 6,7$	207
Битумный праймер	$\alpha$	$140 \pm 17$	$0,5 \pm 0,4$	280
	$\beta$	$1680 \pm 110$	$13,7 \pm 10,2$	123

Таблица 7

Результаты лазерной дезактивации образцов из углеродистой стали  
(радиоактивное загрязнение нанесено на органические покрытия)

Вид покрытия	Тип радиоактивного загрязнения	Уровень радиоактивного загрязнения, част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ )		Коэффициент дезактивации
		исходный	остаточный	
Эмаль ПФ-115	$\alpha$	$136 \pm 16$	$1,7 \pm 1,6$	80
	$\beta$	$1540 \pm 110$	$2,9 \pm 2,6$	531
Битумный праймер	$\alpha$	$147 \pm 18$	$2,3 \pm 1,5$	64
	$\beta$	$1690 \pm 110$	$9,0 \pm 6,2$	188

Таблица 8

Результаты лазерной дезактивации образцов из нержавеющей стали  
(радиоактивное загрязнение нанесено под органические покрытия)

Вид покрытия	Тип радиоактивного загрязнения	Уровень радиоактивного загрязнения, част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ )		Коэффициент дезактивации
		исходный	остаточный	
Эмаль ПФ-115	$\alpha$	$180 \pm 20$	$11,5 \pm 3,1$	15,6
	$\beta$	$1720 \pm 130$	$46 \pm 16$	37,4
Битумный праймер	$\alpha$	$180 \pm 20$	$6,4 \pm 2,7$	28,2
	$\beta$	$1620 \pm 120$	$24,6 \pm 10,8$	65,8
ЦИАТИМ	$\alpha$	$180 \pm 20$	$4,8 \pm 1,7$	37,5
	$\beta$	$1650 \pm 130$	$19,3 \pm 9,0$	85,5

Таблица 9

Результаты лазерной дезактивации образцов из углеродистой стали  
(радиоактивное загрязнение нанесено под органические покрытия)

Вид покрытия	Тип радиоактивного загрязнения	Уровень радиоактивного загрязнения, част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ )		Коэффициент дезактивации
		исходный	остаточный	
Эмаль ПФ-115	$\alpha$	$170 \pm 20$	$5,8 \pm 2,6$	29,3
	$\beta$	$1690 \pm 110$	$8,2 \pm 6,2$	206
Битумный праймер	$\alpha$	$170 \pm 20$	$4,3 \pm 2,0$	39,5
	$\beta$	$1620 \pm 110$	$27,6 \pm 13,8$	58,7
ЦИАТИМ	$\alpha$	$180 \pm 20$	$4,8 \pm 1,7$	37,5
	$\beta$	$1730 \pm 120$	$7,6 \pm 4,2$	228

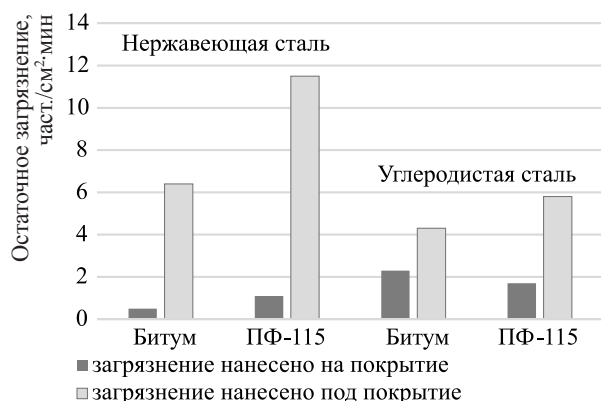


Рис. 4. Зависимость величины остаточного загрязнения  $\alpha$ -излучающими нуклидами нержавеющей и углеродистой сталей от расположения загрязнения и типа покрытий

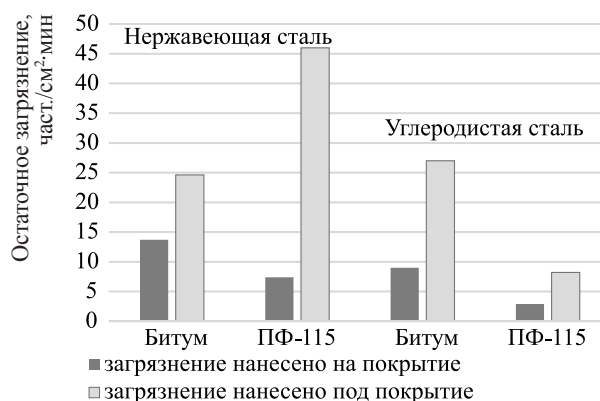


Рис. 5. Зависимость величины остаточного загрязнения  $\beta$ -излучающими нуклидами нержавеющей и углеродистой сталей от расположения загрязнения и типа покрытий

12  $\alpha$ -част./см<sup>2</sup>·мин) и 50  $\beta$ -част./см<sup>2</sup>·мин).

Таким образом, проведённые исследования показали возможность эффективной лазерной дезактивации конструкционных материалов, по уровню поверхностного радиоактивного загрязнения относящихся к категории НАО. Удельная активность образцов, подвергшихся лазерной дезактивации, относится к категории ОНАО.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В процессе исследования подтверждена возможность дезактивации поверхностей сталей марок 12Х18Н10Т и Ст3, загрязнённых  $\alpha$ - и  $\beta$ -излучающими нуклидами, с использованием лазерного излучения. Остаточные уровни радиоактивного загрязнения позволяют снизить первоначальные уровни загрязнения категории НАО и отнести дезактивированные конструкционные материалы к категории ОНАО.

Показано, что практически любое радиоактивное загрязнение, находящееся как на поверхности, так и скрытое под слоем неорганического/органического покрытия или коррозионных отложений, эффективно удаляется при незначительном воздействии на саму металлическую основу.

За счёт внедрения технологии лазерной дезактивации можно существенно повысить качество и безопасность процесса дезактива-

ции загрязнённой металлической поверхности оборудования и конструкционных материалов (особенно локального характера) без использования традиционных жидкостных методов. Масштабирование процесса лазерной дезактивации возможно при создании дополнительных систем безопасности, позволяющих исключить загрязнение дезактивирующего оборудования, а также вторичное загрязнение материалов, подвергающихся дезактивации. Также необходимо предусмотреть отвод газоаэрозольной фазы на систему специальной газоочистки, состоящей из предварительного фильтра (циклона) для удаления твёрдых частиц с размером от 10 до 100 мкм и последовательной цепочки фильтров тонкой очистки для локализации аэрозоля с размером частиц менее 10 мкм. Здесь возможно применение фильтров типа НЕРА 13-14.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Крицкий В.Г., Родионов Ю.А. Основы дезактивации. Способы и технические средства дезактивации. – СПб: ООО "КСИ-Принт", 2013. – 464 с.
2. Санитарные требования к системе обращения с твёрдыми радиоактивными отходами на ФГУП "ПО "Маяк" (СТ ТРО РК - М) : Методические указания. – М.: Феральное медико-биологическое агентство России, 2018. – 30 с.

УДК 628.168.2 : 546.57

© 2023

## **РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ ДЕЗАКТИВИРУЮЩЕЙ СПОСОБНОСТИ МОЮЩИХ СРЕДСТВ СЕРИИ "ВЫБОР" В УСЛОВИЯХ РАДИОХИМИЧЕСКОГО ПРОИЗВОДСТВА**

***О.А. Сахненко, Н.А. Кузнецова, Е.В. Пипков, Н.Р. Габбасова  
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"***

Изучена дезактивирующая способность технических моющих средств серии "Выбор" марок "Выбор-К" и "Выбор-КС" производства ИП Кембрин (г. Пермь) при отмывке облицовочных и конструкционных материалов от  $\alpha$ - и  $\beta$ -загрязняющих нуклидов в присутствии ультразвука и без него. Также в ходе работ оценено коррозионное воздействие моющих растворов на нержавеющую и углеродистую стали. В статье приведены результаты лабораторных исследований и опытно-промышленных испытаний по отмывке технологического оборудования радиохимического производства.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ДЕЗАКТИВАЦИЯ, МОЮЩЕЕ СРЕДСТВО, КОРРОЗИОННОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ, КОЭФФИЦИЕНТ ДЕЗАКТИВАЦИИ, ЭФФЕКТИВНОСТЬ, РАДИОАКТИВНОЕ ЗАГРЯЗНЕНИЕ

Дезактивация является неотъемлемой частью производственного процесса и мероприятий по выводу из эксплуатации ядерных объектов.

Дезактивацию действующего и демонтированного оборудования проводят с целью:

- проведения плановых и внеплановых ремонтов дорогостоящего или дефицитного оборудования;
- снижения уровня активности отдельных узлов оборудования;
- снижения мощности экспозиционной дозы (далее – МЭД) в рабочих помещениях, снижения дозовой нагрузки на персонал;
- понижения категории загрязнения металлических радиоактивных отходов (далее – МРАО) до уровней низкоактивных отходов (далее – НАО), а также для возможности перевода МРАО в категорию металлолома.

Исходя из поставленных производственных задач, требуемые уровни остаточного загрязнения после проведения дезактивационных работ для оборудования и МРАО будут различны. Так, согласно нормам [1] для перевода МРАО в категорию металлолома необходимо снизить радиоактивное загрязнение до  $2,4 \alpha\text{-част./}(\text{см}^2\cdot\text{мин})$ ,  $24 \beta\text{-част./}(\text{см}^2\cdot\text{мин})$  и  $0,05 \text{ мкЗв/ч}$  по  $\gamma$ -загрязнению. Для проведения ремонта различного оборудования нормы

ремонтпригодности должны составлять не более  $5 \alpha\text{-част./}(\text{см}^2\cdot\text{мин})$ ,  $300 \beta\text{-част./}(\text{см}^2\cdot\text{мин})$ ,  $\gamma$ -загрязнение не допускается.

Оборудование с различных технологических переделов характеризуется значительным разнообразием по конструктивному исполнению, принципам работы, радионуклидному составу и степени загрязнения в процессе эксплуатации. Для большинства участков различных подразделений радиохимического производства разработаны и предложены методы и средства, позволяющие достаточно эффективно решать задачи дезактивации. Технологические приёмы дезактивации производственного оборудования, помещений, средств индивидуальной защиты и т. п. отражены в регламентах и инструкциях предприятия.

На сегодняшний день дезактивация значительной части объектов ФГУП "ПО "Маяк" (помещений, оборудования, спецодежды и др.) осуществляется с применением дезрастворов на основе различных органических и минеральных кислот, щелочей, ПАВ, комплексообразователей и т. д. В ряде случаев штатные дезактивирующие растворы не могут совместить в себе высокую степень дезактивации оборудования от различного вида радиоактивных загрязнений и низкое коррозионное воздействие. Проблема дезактивации оборудования, изготовленного из



углеродистой стали и чугуна, остаётся актуальной до сих пор.

Традиционные методы дезактивации имеют ряд основных недостатков:

- значительный объём отработанных дезрастворов, поскольку в большинстве случаев отмывка ёмкостного оборудования производится методом их заполнения с однократным использованием рабочих растворов;

- низкая эффективность за счёт увеличения кратности использования дезрастворов при отмывке съёмного оборудования из-за прекращения сбросов ЖРО в В-9;

- высокое солесодержание вторичных ЖРО, образующихся при проведении дезактивации;

- трудности в переработке таких ЖРО из-за значительного содержания ПАВ, ионов натрия и органических кислот.

На протяжении более десяти лет на ФГУП "ПО "Маяк" поставляются технические моющие средства (далее – ТМС) специального назначения компании "ВЫБОР", г. Пермь. Препараты данной серии хорошо зарекомендовали себя на различных объектах атомной отрасли. Сотрудниками ЦЗЛ проводились лабораторные и опытно-промышленные испытания этих препаратов. Из большой линейки препаратов серии "Выбор" ("Выбор-КС", "Выбор-К", "Выбор-1", "Выбор-1М", "Выбор-Ц" и "Выбор-1Ш") наиболее эффективными с точки зрения дезактивации в условиях радиохимического производства оказались препараты "Выбор-К" и "Выбор-КС". Препараты марок "Выбор-К" и "Выбор-КС" обладают сопоставимой со штатными дезактивирующими растворами дезактивирующей способностью по отношению к некоторым конструкционным материалам, и их коррозионное воздействие на конструкционные материалы минимально по сравнению со штатными растворами.

В данной статье представлены результаты лабораторных испытаний по оценке дезактивирующей способности ТМС серии "Выбор" марок "Выбор-К" и "Выбор-КС" применительно к технологическому оборудованию радиохимического производства, по оценке влияния наложения ультразвука (далее – УЗ) на эффективность дезактивации конструкционных материалов препаратами серии "Выбор", а также данные по

изучению коррозионного воздействия ТМС серии "Выбор" на конструкционные материалы.

## ХАРАКТЕРИСТИКА ПРЕПАРАТОВ МАРОК ВЫБОР-К И ВЫБОР-КС

Моющее средство технического назначения марки "Выбор-К" предназначено для обработки различных поверхностей (пластика, кафеля, санфаянса, металла и т. д.) во время уборки помещений. По данным производителя, ТМС эффективно удаляет мазуто-масляные загрязнения, пятна ржавчины, отложения солей жёсткости и мочевого камня.

ТМС марки "Выбор-КС" предназначено для дезактивации различных поверхностей и создания на их поверхности защитной плёнки.

ТМС марки "Выбор-К" и "Выбор-КС" представляют собой гелеобразные хорошо растворимые в воде жидкости с характерным запахом и цветом. В состав ТМС "Выбор-К" и "Выбор-КС" входит смесь поверхностно-активных веществ (далее – ПАВ) в сочетании с комплексообразующими веществами, минеральными и органическими кислотами. По представленным от производителя данным, основой состава "Выбор-КС" является ортофосфорная кислота, состава "Выбор-К" – лимонная кислота. Анализ концентратов препаратов, выполненный фотометрическим методом согласно утверждённому на производстве методикам, показал, что в препарате "Выбор-К" массовая концентрация анионных ПАВ составляет 0,23 г/дм<sup>3</sup>, а неионогенных ПАВ – 7,94 г/дм<sup>3</sup>. В препарате "Выбор-КС" эти показатели составляют соответственно 21,3 г/дм<sup>3</sup> и <1 г/дм<sup>3</sup>.

В зависимости от загрязнения рабочие массовые концентрации препаратов марок "Выбор-К" и "Выбор-КС" составляют до 30 г/дм<sup>3</sup> и до 20 г/дм<sup>3</sup> соответственно.

## ОЦЕНКА ДЕЗАКТИВИРУЮЩЕЙ СПОСОБНОСТИ ПРЕПАРАТОВ СЕРИИ "ВЫБОР"

### *Результаты дезактивации методом натирки и погружения*

В качестве объектов исследования дезактивирующей способности предложенных

средств были выбраны углеродистая сталь Ст 3 и нержавеющая сталь марки 12Х18Н10Т. Данный выбор обусловлен тем, что большинство оборудования изготовлено в основном из этих материалов.

Для загрязнения образцов использовали азотнокислый раствор с удельной  $\beta$ -активностью  $7 \cdot 10^2$  Бк/дм<sup>3</sup>, содержащий смесь продуктов деления (изотопы <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>144</sup>Ce, <sup>106</sup>Ru), и технологические пробы, содержащие в своём составе  $\alpha$ -радионуклиды (<sup>239</sup>Pu, <sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>U и др.) с удельной активностью  $5 \cdot 10^5$  Бк/дм<sup>3</sup>.

На обезжиренные образцы нержавеющей и углеродистой стали капельным методом наносили расчётное количество загрязняющего раствора, после чего их сушили в вытяжном шкафу в течение суток. Далее измеряли начальное загрязнение образцов. Для получения статистически более достоверных результатов проводили три параллельных эксперимента в каждом опыте.

Дезактивацию образцов конструкционных материалов проводили тремя способами:

- метод натирки (продолжительность обработки 3 мин за один цикл);
- погружение в дезактивирующий раствор при различных температурах циклами по 60 мин при соотношении площади образца к объёму рабочего раствора 1 см<sup>2</sup> : 10 см<sup>3</sup>;
- ультразвуковая обработка (в условиях, аналогичных погружной дезактивации).

При ультразвуковой дезактивации использовали УЗ-установку УЗВ-18/200-ТН с выходной мощностью  $285 \pm 75$  Вт.

Эффективность дезактивирующих средств оценивали значением коэффициента дезактивации, определяемого отношением уровней радиоактивного загрязнения образцов до и после дезактивации.

Оценка эффективности дезактивации осуществлялась на основе установленного суммарного коэффициента дезактивации за три цикла в соответствии с государственным стандартом [2], приведённого в табл. 1.

Результаты экспериментов по изучению дезактивирующей способности препаратов серии "Выбор" на конструкционные материалы приведены в табл. 2 и 3.

Из табл. 2 видно, что препараты серии "Выбор" более эффективны при отмывке кон-

Таблица 1

Требования к коэффициенту дезактивации по оценке эффективности ТМС

Установленный коэффициент дезактивации после третьего цикла дезактивации	Оценка эффективности дезактивирующего раствора
Не более 10	Неудовлетворительно
Св. 10 до 30 включ.	Удовлетворительно
Св. 30 до 100 включ.	Хорошо
Св. 100	Отлично

струкционных материалов от  $\beta$ -загрязнения, чем от загрязнений, обусловленных наличием  $\alpha$ -радионуклидов. Также установлено, что эффективность дезактивации препаратами "Выбор-К" и "Выбор-КС" при отмывке нержавеющей стали сопоставимы. Исследуемые растворы недостаточно эффективны при дезактивации углеродистой стали от  $\alpha$ -радионуклидов. Остаточное загрязнение образцов после трёхкратной обработки достигало 250  $\alpha$ -част./(см<sup>2</sup>·мин). Отмечено, что основное радиоактивное загрязнение удалялось после первого цикла дезактивации.

Далее оценили дезактивирующую способность дезрастворов серии "Выбор" при отмывке методом погружения.

Результаты приведены в табл. 3.

Из табл. 3 видно, что дезрастворы на основе препаратов серии "Выбор" эффективны при отмывке нержавеющей и углеродистой сталей от  $\beta$ -радионуклидов методом погружения как при комнатной, так и при повышенной температуре дезраствора. Остаточное радиоактивное загрязнение образцов металлов после одного-двух циклов обработки достигло фоновых значений радиометрической установки.

Отмечено, что дезрастворы на основе препаратов серии "Выбор" недостаточно эффективны при отмывке образцов от  $\alpha$ -загрязнений, особенно при выдержке образцов углеродистой стали в дезрастворах при комнатной температуре. Коэффициенты дезактивации не превышали значения 1,4. Повышение температуры дезрастворов позволило повысить эффективность дезактивации в 30 раз.



Таблица 2

Результаты дезактивации образцов конструкционных материалов методом натирки

Средство	Вид загрязнения	Исходное загрязнение $A_0$ , част./((см <sup>2</sup> ·мин)	Остаточное загрязнение после, част./((см <sup>2</sup> ·мин)			Суммарный коэффициент дезактивации за три цикла
			1 цикла	2 цикла	3 цикла	
Нержавеющая сталь						
Выбор-К	$\alpha$	770	76	38	27	29
	$\beta$	2750	24	13	12	229
Выбор-КС	$\alpha$	845	65	34	23	37
	$\beta$	1745	фон*	—	—	> 290
Углеродистая сталь						
Выбор-К	$\alpha$	960	370	263	250	4
	$\beta$	3340	41	34	33	100
Выбор-КС	$\alpha$	1175	57	47	45	26
	$\beta$	3100	52	40	36	86

Примечание. \*Фоновые значения радиометрической установки составляли 0,5  $\alpha$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ) и 60  $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ).

Таблица 3

Результаты дезактивации образцов конструкционных материалов методом погружения при различных температурах

Средство	Вид загрязнения	Исходное загрязнение $A_0$ , част./(см <sup>2</sup> ·мин)	Остаточное загрязнение после, част./(см <sup>2</sup> ·мин)			Суммарный коэффициент дезактивации за три цикла
			1 цикла	2 цикла	3 цикла	
Нержавеющая сталь, температура 25 °С						
Выбор-К	$\alpha$	700	194	93	67	10
	$\beta$	1540	22	16	фон*	> 256
Выбор-КС	$\alpha$	630	84	44	27	23
	$\beta$	1780	17	13	фон*	> 296
Нержавеющая сталь, температура 60 °С						
Выбор-К	$\alpha$	1230	220	67	43	29
	$\beta$	1320	10	фон*	—	> 220
Выбор-КС	$\alpha$	2000	68	40	28	71
	$\beta$	1240	10	фон*	—	> 206
Углеродистая сталь, температура 25 °С						
Выбор-К	$\alpha$	2100	1908	1577	1500	1,4
	$\beta$	3680	28	20	фон*	> 613
Выбор-КС	$\alpha$	2200	1830	1750	1690	1,3
	$\beta$	2970	50	33	20	149
Углеродистая сталь, температура 60 °С						
Выбор-К	$\alpha$	1570	125	73	43	37
	$\beta$	2665	19	фон*	—	> 444
Выбор-КС	$\alpha$	1870	152	66	48	39
	$\beta$	2700	19	фон*	—	> 450

Примечание. \*Фоновые значения радиометрической установки составляли 0,5  $\alpha$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ) и 60  $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ).

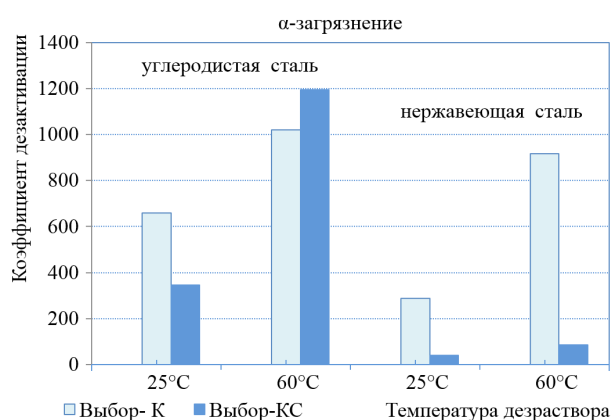


Рис. 1. Результаты ультразвуковой дезактивации образцов конструкционных материалов, загрязнённых α-излучающими радионуклидами

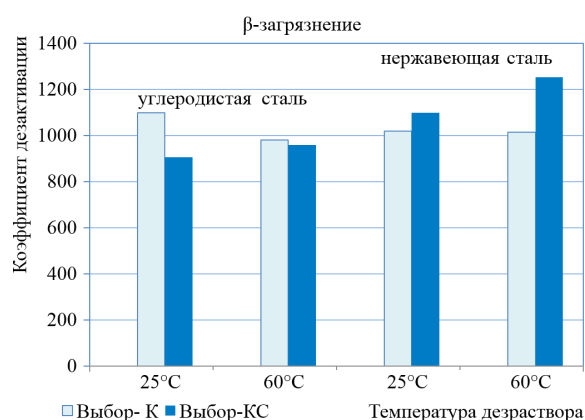


Рис. 2. Результаты ультразвуковой дезактивации образцов конструкционных материалов, загрязнённых β-излучающими радионуклидами

В целом, препарат "Выбор-КС" эффективнее в 2-3 раза, чем "Выбор-К" при дезактивации образцов нержавеющей стали.

#### Результаты ультразвуковой дезактивации

Следующая серия экспериментов заключалась в оценке дезактивирующей способности дезрастворов серии "Выбор" при отмывке методом погружения в ультразвуковой ванне циклами по 1 ч при температуре 25 °C и 60 °C. Исходное загрязнение образцов металлов составляло от 960 до 3900 α-част./(см<sup>2</sup>·мин) и от 5440 до 7500 β-част./(см<sup>2</sup>·мин).

Результаты приведены на рис. 1 и 2.

За три цикла ультразвуковой дезактивации препаратами "Выбор-К" и "Выбор-КС" были отмыты образцы нержавеющей стали, загрязнённые β-радионуклидами, и образцы углеродистой стали, имеющие как α-, так и β-загрязнение, до фоновых значений радиометрической установки. Определено, что "Выбор-К" при отмывке образцов нержавеющей стали от α-радионуклидов от 7 до 11 раз эффективнее, чем его аналог – "Выбор-КС".

На рис. 3 приведены результаты отмывки образцов нержавеющей стали от β-загрязняющих радионуклидов при различных температурах в присутствии УЗ и без него.

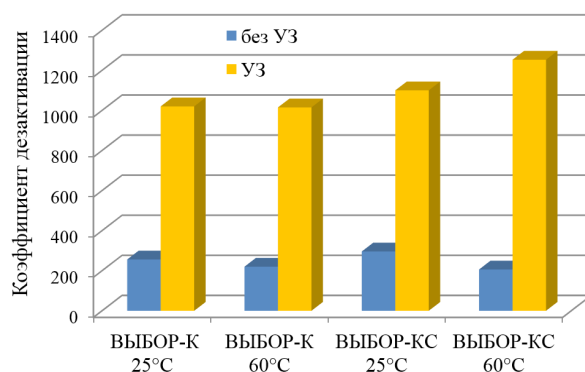


Рис. 3. Результаты ультразвуковой дезактивации образцов конструкционных материалов, загрязнённых β-излучающими радионуклидами

В целом, при отмывке образцов нержавеющей стали от β-загрязнения с наложением УЗ коэффициенты дезактивации по сравнению с погружным методом возросли как минимум в пять раз, а при отмывке образцов углеродистой стали – от двух до пяти раз.

Также отмечено, что повышение температуры дезраствора положительно сказывается на эффективности дезактивации конструкционных материалов, загрязнённых α-излучающими радионуклидами. Коэффициенты дезактивации увеличились примерно в 3 раза. Повышение

температуры дезраствора до 60 ° С также позволило сократить количество циклов дезактивации, а соответственно, и уменьшить объём вторичных ЖРО в ряде случаев до трёх раз.

### ОПЫТНО-ПРОМЫШЛЕННЫЕ ИСПЫТАНИЯ

В качестве объектов испытания были выбраны три одинаковые детали призмы столов-накопителей.

Исходное и остаточное  $\beta$ -загрязнение деталей определяли методом "мокрого" мазка (тампоном, смоченным водой) согласно инструкции предприятия.

Исходные уровни  $\beta$ -загрязнения объектов испытания составляли от 6000 до 20000  $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ). Альфа-загрязнение отсутствовало. Мощность амбиентного эквивалента дозы  $\gamma$ -излучения от поверхности деталей не превышала 6 мкЗв/ч.

Дезактивацию осуществляли методом натирки ветошью, смоченной соответствующим дезраствором, при комнатной температуре тремя циклами по 3 мин. Для сравнения эффективности отмытки также параллельно проводили дезактивацию аналогичной детали с использо-

ванием штатного дезактивирующего раствора ЛАБСК. Массовая концентрация дезраствора ЛАБСК составляла 100 г/дм<sup>3</sup>.

Результаты проведённых испытаний приведены в табл. 4.

Из табл. 4 видно, что эффективность дезактивации дезраствора на основе препарата "Выбор-К" несколько ниже по сравнению с дезраствором 100 г/дм<sup>3</sup> ЛАБСК и раствором "Выбор-КС". Коэффициенты дезактивации не превышали значения 23.

Отметим также, что эффективность отмытки оборудования, загрязнённого  $\beta$ -радионуклидами, дезрастворами на основе "Выбор-КС" и ЛАБСК сопоставима, несмотря на трёхкратную разницу в их концентрациях. Попытка повысить концентрацию препаратов "Выбор-К" и "Выбор-КС" до массовой концентрации 50 г/дм<sup>3</sup> с целью улучшения качества дезактивации не дала положительных результатов. При проведении дезактивации второй партии радиоактивно загрязнённых комплектующих были получены результаты, аналогичные данным, представленным в табл. 4.

На следующем этапе опытно-промышленных испытаний проводили отмытку винтов пробки чехлов транспортных судовых уста-

Таблица 4

Результаты дезактивации призм столов-накопителей с применением ТМС серии "Выбор"

Дезраствор	Исходное загрязнение, $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ )	Остаточное снимаемое загрязнение, $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ )			Суммарный коэффициент дезактивации за три цикла
		1 цикла	2 цикла	3 цикла	
Выбор-К 30 г/дм <sup>3</sup>	6000	4500	700	700	8,6
	16000	4500	750	700	22,9
	18000	5300	2500	2100	8,6
	20000	7500	1800	1600	12,5
Выбор-КС 20 г/дм <sup>3</sup>	12000	2400	1200	400	30,0
	15000	4500	600	500	30,0
	10000	1800	450	240	41,7
	18000	1200	750	270	66,7
ЛАБСК 100 г/дм <sup>3</sup>	12000	4500	1200	360	33,3
	15000	3700	450	300	50,0
	10000	1800	1200	240	41,7
	18000	5300	1200	210	85,7

новок. Винты изготовлены из стали марки 14X17H2. Снимаемое загрязнение винтов составляло 10000  $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ),  $\alpha$ -загрязнение отсутствовало. Дезактивацию осуществляли следующим образом: деталь обматывали ветошью, смоченной дезрастворами серии "Выбор" с массовой концентрацией 50 г/дм<sup>3</sup> при комнатной температуре и оставляли в проветриваемом помещении на 15 ч. После выдержки ветошь удаляли и проводили промывку деталей струей холодной воды. Результаты испытаний показали, что после использования препаратов "Выбор-К" и "Выбор-КС" значения остаточного радиоактивного загрязнения были сопоставимы и составляли не более 600  $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ ), что соответствует требованием КУ (поверхностное загрязнение для чехлов должно быть не более 2000  $\beta$ -част./( $\text{см}^2 \cdot \text{мин}$ )). Отмечено, что при использовании препарата "Выбор-КС" с массовой концентрацией 50 г/дм<sup>3</sup> поверхность обработанных деталей имела удовлетворительный внешний вид и была полностью очищена от окислов и ржавчины.

### ОЦЕНКА КОРРОЗИОННОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ РАСТВОРОВ СЕРИИ "ВЫБОР"

Коррозионное воздействие дезрастворов, приготовленных на основе средств серии "Выбор", на конструкционные материалы оценивали по потере массы с единицы площади поверхности образца за время погружения в рабочий раствор заданной концентрации и температуры в присутствии ультразвука.

Режимы отмывки предусматривают проведение дезактивационных работ при различных температурах, поэтому необходимо было исследовать коррозионное воздействие исследуемых препаратов серии "Выбор" и штатного азотно-оксалатного раствора как при комнатной (25 °С), так и при повышенной (60 °С) температурах. Соотношение площади образца к объёму рабочего раствора составляло 1  $\text{см}^2$  : 10  $\text{см}^3$ . Коррозионные испытания для каждого ТМС проводили тремя циклами по часу.

В качестве источника ультразвуковых колебаний выступала лабораторная ультразвуко-

Таблица 5

Скорость коррозии конструкционных материалов в исследуемых дезактивирующих растворах методом погружения в присутствии УЗ

Дезактивирующий раствор	Температура раствора, °С	Скорость коррозии $V_k$ , г/(м <sup>2</sup> ·ч)			
		1 цикл	2 цикл	3 цикл	Суммарная за 3 цикла
Нержавеющая сталь					
30 г/дм <sup>3</sup> Выбор-К	(40±2)	0,08	0,08	0,23	0,13
	(60±2)	0,16	0,23	0,13	0,17
20 г/дм <sup>3</sup> Выбор-КС	(40±2)	0,11	0,02	0,11	0,08
	(60±2)	0,07	0,13	0,38	0,20
50 г/дм <sup>3</sup> HNO <sub>3</sub> + 10 г/дм <sup>3</sup> H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	(40±2)	0,16	0	0	0,06
	(60±2)	0,26	0	0	0,14
Углеродистая сталь					
30 г/дм <sup>3</sup> Выбор-К	(40±2)	2,00	1,11	2,18	1,94
	(60±2)	2,12	2,68	2,24	2,35
20 г/дм <sup>3</sup> Выбор-КС	(40±2)	1,85	2,54	3,02	2,45
	(60±2)	2,44	2,58	2,87	2,58
50 г/дм <sup>3</sup> HNO <sub>3</sub> + 10 г/дм <sup>3</sup> H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	(40±2)	1167,2	1779,7	1147,6	1366
	(60±2)	1528,5	1762,4	1482,8	1591,0

вая ванна фирмы "ГАЛС" марки ПСБ-18035-05 с мощностью УЗ-генератора 0,3 кВт.

В ходе проведения коррозионных испытаний при комнатной температуре под действием УЗ наблюдали постепенное повышение температуры раствора до 40 °С. Результаты коррозионных испытаний представлены в табл. 5.

Результаты оценки коррозионного воздействия исследуемых ТМС показали, что даже незначительное повышение температуры рабочих растворов на основе препаратов серии "Выбор" увеличило скорость коррозии металлов в среднем в 1,5 раза. Скорость коррозии нержавеющей и углеродистой сталей после трёх циклов обработки в УЗ-ванне не превышала 0,2 г/(м<sup>2</sup>·ч) и 2,58 г/(м<sup>2</sup>·ч) соответственно. Оба раствора оказывают щадящее коррозионное воздействие на конструкционные материалы.

Азотно-оксалатный раствор оказывает минимальное коррозионное воздействие на нержавеющую сталь. Однако при выдержке образцов углеродистой стали в данном растворе в присутствии УЗ наблюдали растворение металла. Скорость коррозии до 800 раз превышала аналогичные показатели, полученные в серии экспериментов с препаратами "Выбор". Данный раствор неприемлем для ультразвуковой дезактивации оборудования из углеродистой стали и требует корректировки состава путём добавления в него ингибиторов коррозии.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Проведены лабораторные и опытно-промышленные испытания моющих средств серии "Выбор" на предмет оценки их дезактивирующей способности при отмывке технологического оборудования в условиях радиохимического завода, а также их коррозионного воздействия на конструкционные материалы.

2. Установлено, что дезрастворы "Выбор-К" и "Выбор-КС" обладают высокой дезактивирующей способностью по отношению к конструкционным материалам (углеродистой и нержавеющей сталям), загрязнённым β-радионуклидами. В целом, эффективность дезактивации сопоставима с применяемыми в настоящее время на радио-

химическом заводе штатными дезактивирующими растворами. Уровни остаточного радиоактивного загрязнения соответствовали контрольным уровням, действующим на предприятии.

3. Определено, что интенсификация процесса дезактивации путём наложения УЗ оказывает положительное влияние на качество дезактивации.

4. Отмечено, что использование УЗ дезактивации позволяет сократить объёмы ЖРО как минимум в два раза за счёт сокращения циклов обработки.

5. Установлено, что препараты серии "Выбор" оказывают щадящее коррозионное воздействие на конструкционные материалы.

6. Опытно-промышленные испытания, проведённые в условиях радиохимического производства, показали, что наиболее эффективным средством дезактивации нержавеющей стали как при натирке, так и при проведении ультразвуковой обработки является препарат марки "Выбор-КС".

7. Для проведения ультразвуковой дезактивации оборудования из углеродистой стали возможно использование обоих составов серии "Выбор".

8. Препараты серии "Выбор" были рекомендованы к использованию в подразделениях ФГУП "ПО "Маяк".

## ЛИТЕРАТУРА

1. Гигиенические требования по обеспечению радиационной безопасности при заготовке и реализации металлолома: СанПиН 2.6.1.993-00: утв. Главным государственным санитарным врачом 29.10.2000: введ. в действие 10.04.2001.
2. ГОСТ 12.4.269-2014 Система стандартов безопасности труда. Средства индивидуальной защиты, предназначенные для работ с радиоактивными веществами, и материалы для их изготовления. Метод определения дезактивирующей способности растворов.
3. Контрольные уровни объёмной активности воздуха, радиоактивного загрязнения поверхностей, индивидуальных доз облучения и мощности дозы ионизирующего излучения: КУРБ-235-2020 / ФГУП "ПО "Маяк". – 16 с. – Введ. приказом №193-6.1/990-П от 20.03.2021.

УДК 004.6 + 621.039.7

© 2023

**РАЗРАБОТКА АВТОМАТИЗИРОВАННОЙ БАЗЫ ДАННЫХ  
ДЛЯ СОЗДАНИЯ МЕТОДИЧЕСКИХ ОСНОВ СИСТЕМЫ  
ХАРАКТЕРИЗАЦИИ ОСТЕКЛОВАННЫХ ВАО,  
НАКОПЛЕННЫХ НА ФГУП "ПО "МАЯК"**

*Л.Г. Елагина, М.Б. Ремизов, П.В. Козлов, И.И. Дементьева  
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Для оценки и обоснования безопасности захоронения накопленных на ФГУП "ПО "Маяк" остеклованных высокоактивных отходов (ОВАО) создана система характеристики и автоматизированная база данных ОВАО. В базе данных собрана вся доступная аналитическая информация об ОВАО, выполнены расчёты на основе разработанного интегрального алгоритма оценки содержания радиологически значимых радионуклидов (РЗРН) в упаковках с ОВАО.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ОСТЕКЛОВАННЫЕ ВЫСОКОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ, АВТОМАТИЗИРОВАННАЯ БАЗА ДАННЫХ, РАДИОЛОГИЧЕСКИ ЗНАЧИМЫЕ РАДИОНУКЛИДЫ, ОПЕРАЦИЯ

На ФГУП "ПО "Маяк" начиная с 1987 года проводится отверждение радиоактивных отходов (РАО) от переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) в алюмофосфатное стекло. За время эксплуатации пяти электропечей остекловывания (ЭП-500/2, ЭП-500/1-р, ЭП-500/3, ЭП-500/4 и ЭП-500/5) накоплено около 7,72 тыс. т ОВАО суммарной активностью (на момент отверждения) около 834 млн Ки.

Остеклованные ВАО, согласно классификации [1], относятся к РАО класса 1 и подлежат захоронению в пунктах глубинного захоронения радиоактивных отходов (ПГЗРО). Предполагается размещать такие отходы глубоко под землёй в геологических формациях на участке "Енисейский" (Красноярский край). При обосновании безопасности ПГЗРО необходимо выполнение прогнозных модельных расчётов с учётом характеристик кондиционированных ВАО и барьеров безопасности: как инженерных, так и естественных. Для анализа безопасности захоронения ОВАО требуется информация об изменении свойств стекломатериалов при долговременном хранении в специфических условиях (температурные, радиационные поля, прочие факторы воздействия). Одной из ключевых характеристик РАО явля-

ется радионуклидный состав, требования об определении которого зафиксированы в общих критериях приемлемости для захоронения [2].

С учётом принятой стратегии захоронения РАО [3], на приведённые в соответствии с критериями приемлемости РАО [2] составляется паспорт. Паспорт РАО составляется на каждую упаковку организацией, осуществившей кондиционирование РАО.

Настоящая статья посвящена разработке "Автоматизированной базы данных ОВАО ФГУП "ПО "Маяк", в которой собрана вся доступная аналитическая информация об остеклованных отходах и которая потребуется для паспортизации упаковок с ОВАО. Данная работа выполнялась в рамках Государственного контракта "Создание методических основ системы характеристики и автоматизированной базы данных остеклованных высокоактивных отходов ФГУП "ПО "Маяк" № Н.4д.241.20.17.1088 от 03.11.2017.

При формировании требований к паспортизации РАО в контексте обоснования долговременной безопасности захоронения в ПГЗРО и при отсутствии в критериях приемлемости РАО для захоронения [2] списка радионуклидов, определяющих радиационную



опасность ПГЗРО, необходимо определить перечень РЗРН для ОВАО. Методический подход к определению перечня РЗРН из 24 радионуклидов представлен в [4]. В качестве критериев, определяющих радиологическую значимость радионуклида, выделяются: период полураспада, миграционные характеристики и дозовый коэффициент при поступлении с водой. Позднее, по согласованию с ИБРАЭ РАН и ФГУП "ПО "Маяк", был определён перечень РЗРН из 34 радионуклидов, представленный в таблице.

Ввиду объективных сложностей по прямому измерению радионуклидного состава ОВАО и несоответствия архивной информации современным требованиям, характеристики исходных ОВАО таковы, что определение всего перечня РЗРН крайне затруднено, имеются лишь данные по содержанию отдельных  $\gamma$ -излучающих радионуклидов, определяющих

активность РАО в момент их кондиционирования (как правило, это Cs-134, Cs-137, Eu-154, Ru-106 и др.). Одним из инструментов решения задачи определения радионуклидного состава упаковок с ОВАО при значительном объёме накопленных ОВАО стал разработанный интегральный алгоритм расчёта содержания РЗРН в ОВАО, основанный на анализе и установлении соответствия между характеристиками переработанного ОЯТ (от начала эксплуатации завода РТ-1 в 1977 г.) и остеклованных ВАО [5–7].

Разработанный алгоритм для определения РЗРН в ОВАО был реализован в виде двух программных модулей в "Автоматизированной базе данных остеклованных ВАО ФГУП "ПО "Маяк":

1. Программный модуль на основе разработанного интегрального алгоритма оценки содержания РЗРН в ОВАО позволяет рассчитывать содержание 10 РЗРН во всех "операциях"

Таблица

Перечень радиологически значимых для долговременной безопасности ПГЗРО радионуклидов

№	Нуклид	$T_{1/2}$ , лет	№	Нуклид	$T_{1/2}$ , лет
1	C-14	$5,73 \cdot 10^3$	18	Pu-238	$8,77 \cdot 10^1$
2	C1-36	$3,01 \cdot 10^5$	19	Pu-240	$6,54 \cdot 10^3$
3	Ni-59	$7,50 \cdot 10^4$	20	Pu-242	$3,76 \cdot 10^5$
4	Se-79	$6,50 \cdot 10^4$	21	Cm-246	$4,73 \cdot 10^3$
5	Zr-93	$1,53 \cdot 10^6$	22	Pu-241	$1,44 \cdot 10^1$
6	Nb-94	$2,03 \cdot 10^4$	23	Am-241	$4,32 \cdot 10^2$
7	Tc-99	$2,13 \cdot 10^5$	24	U-235	$7,04 \cdot 10^8$
8	Pd-107	$6,50 \cdot 10^6$	25	Pu-239	$2,41 \cdot 10^4$
9	Sn-126	$1,00 \cdot 10^5$	26	Cm-245	$8,50 \cdot 10^3$
10	I-129	$1,57 \cdot 10^7$	27	Sr-90	$2,91 \cdot 10^1$
11	Cs-135	$2,30 \cdot 10^6$	28	Mo-93	$3,50 \cdot 10^3$
12	Am-243	$7,38 \cdot 10^3$	29	Ni-63	$9,60 \cdot 10^1$
13	U-233	$1,58 \cdot 10^5$	30	Ag-108m	$1,27 \cdot 10^2$
14	U-234	$2,44 \cdot 10^5$	31	Sn-121m	$5,50 \cdot 10^1$
15	U-236	$2,34 \cdot 10^7$	32	Cs-137	$3,00 \cdot 10^1$
16	U-238	$4,47 \cdot 10^9$	33	Sm-151	$9,00 \cdot 10^1$
17	Np-237	$2,14 \cdot 10^6$	34	Cm-244	$1,81 \cdot 10^1$

и в каждом пенале, полученном во время эксплуатации электропечей ЭП-500/2, ЭП-500/1-р, ЭП-500/3 и ЭП-500/4 по суммарной активности  $\beta$ -излучающих радионуклидов и по радиоактивности Cs-137.

2. Программный модуль на основе разработанного интегрального алгоритма оценки содержания РЗРН в ОВАО позволяет рассчитать содержание 25 РЗРН во всех "операциях" и в каждом пенале, полученном во время эксплуатации электропечи ЭП-500/5 по суммарной активности  $\beta$ -излучающих радионуклидов и по радиоактивности Cs-137.

"Автоматизированная база данных ОВАО ФГУП "ПО "Маяк" представляет собой базу данных (БД), в которой накапливается вся доступная архивная информация о характеристиках ОВАО и их упаковках, и разработанное программное обеспечение для взаимодействия с БД – информационная система управления базы данных (ИСУ БД).

ИСУ БД представляет пользовательский интерфейс в качестве набора связанных окон или форм, создаёт удобную среду для работы с БД, позволяя последовательно заполнять, обрабатывать и визуализировать информацию. Кроме того, ИСУ БД реализует алгоритмы для расчёта содержания РЗРН в ОВАО.

ИСУ БД разработана на платформе программы Microsoft Access 2013 и состоит из подсистем, выполняющих определённые функции.

1. Подсистема "Электропечи ЭП-500" содержит сводную информацию по параметрам эксплуатации каждой из пяти электропечей ЭП-500/2, ЭП-500/1-р, ЭП-500/3, ЭП-500/4 и ЭП-500/5:

- период эксплуатации (дату пуска и дату остановки);
- количество переработанных "операций";
- количество пеналов с ОВАО;
- массу ОВАО в пеналах;
- активность ЖРО, переработанных в ОВАО;
- объём переработанных ЖРО.

2. Подсистема "Хранилище ОВАО" визуализирует структуру хранилища ОВАО, позволяет просматривать в выбранной ячейке параметры хранящихся в ней пеналов.

Хранилище ОВАО состоит из отсеков с ячейками. У каждой ячейки свой уникальный

номер. Сваренное стекло заливают в стальные бидоны объёмом 200 дм<sup>3</sup>, которые упаковывают в стальные пеналы. Количество бидонов в "длинном" пенале составляет 3 шт., а в "коротком" – 2 шт. В одной ячейке может располагаться два "длинных" пенала и один "короткий" пенал. Всего в хранилище ОВАО хранятся 5695 пеналов с ОВАО. С 1994 года в пеналах хранилища ОВАО размещаются также отработанные закрытые источники ионизирующего излучения (ЗИИИ).

Форма "Хранилище ОВАО" представляет информацию по пеналам в ячейке:

- номер ячейки;
- номер пенала;
- дата загрузки пенала;
- масса стекла в пенале;
- номер "операции";
- номер электропечи;
- активность  $\alpha$ -,  $\beta$ -излучающих радионуклидов в пенале;
- активность отработанных ЗИИИ, помещённых в пенал.

3. Пять однотипных подсистем "Операции ЭП-500" (по числу установок остекловывания на электропечах ЭП-500/2, ЭП-500/1-р, ЭП-500/3, ЭП-500/4 и ЭП-500/5) позволяют визуализировать обширную информацию по характеристикам "операций", осуществляя переходы к отдельным блокам информации через подчинённые формы.

При переработке различных видов ОЯТ образуются высокоактивные растворы, которые после объединения их между собой и со среднеактивными растворами, перемешивания и упаривания собирают в ёмкости-хранилища объёмом 285 м<sup>3</sup>. Содержимое одной ёмкости после подготовки направляется на остекловывание. Такая партия ОВАО, характеризующаяся одним радионуклидным составом, традиционно называется "операцией". Каждой "операции" присваивается порядковый номер.

После завершения переработки очередной "операции" её основные характеристики, результаты химического и радиохимического анализов фиксируются в специальных актах.

Форма "Операция" предоставляет доступ к данным по переработке отдельных "операций":

- номер электропечи;
- номер "операции";

- объём порции перерабатываемых растворов в "операции";
- обогащение по U-235;
- объёмная и суммарная активность  $\alpha$ -,  $\beta$ -излучающих радионуклидов в стеклообразующем растворе;
- радионуклидный состав стеклообразующего раствора (Cs-137, Cs-134, Eu-154, Ru-106);
- элементный состав стеклообразующего раствора, состав раствора и стекла по оксидам;
- документацию по "операции" (скан-копии подлинников актов о готовности "операции" к переработке и актов о переработке "операции");
- перечень и характеристики пеналов с ОВАО, полученных в ходе выполнения выбранной "операции";
- результаты расчёта содержания РЗРН в ОВАО по отдельным "операциям" и по отдельным упаковкам (пеналам);

4. Подсистема "Информация о переработанном ОЯТ" содержит информацию о качественном и количественном составе переработанного ОЯТ с начала эксплуатации завода РТ-1 в 1977 году по годам или месяцам.

Интуитивно понятный интерфейс ИСУ БД реализует логику алгоритмов, помогает визуализировать информацию, проверить её содержание. Примеры реализации таких интерфейсов приведены на рис. 1–4.

Пользовательский интерфейс позволяет интерактивно построить наглядные отчёты, просмотреть информацию в разрезе различных измерений:

- сводные данные о пеналах с ОВАО по отсекам хранилища ОВАО;
- сводные данные о пеналах хранилища ОВАО по пяти электропечам (рис. 5);
- сводные данные по результатам расчёта содержания РЗРН в ОВАО по отдельным "операциям";
- сводные данные по результатам расчёта содержания РЗРН в ОВАО по отдельным упаковкам (пеналам);
- сводные данные о переработанном ОЯТ по годам или месяцам.

В настоящее время идёт наполнение БД информацией об отработанных ЗИИИ. Разработано программное обеспечение ИСУ БД по визуализации информации и характеристик

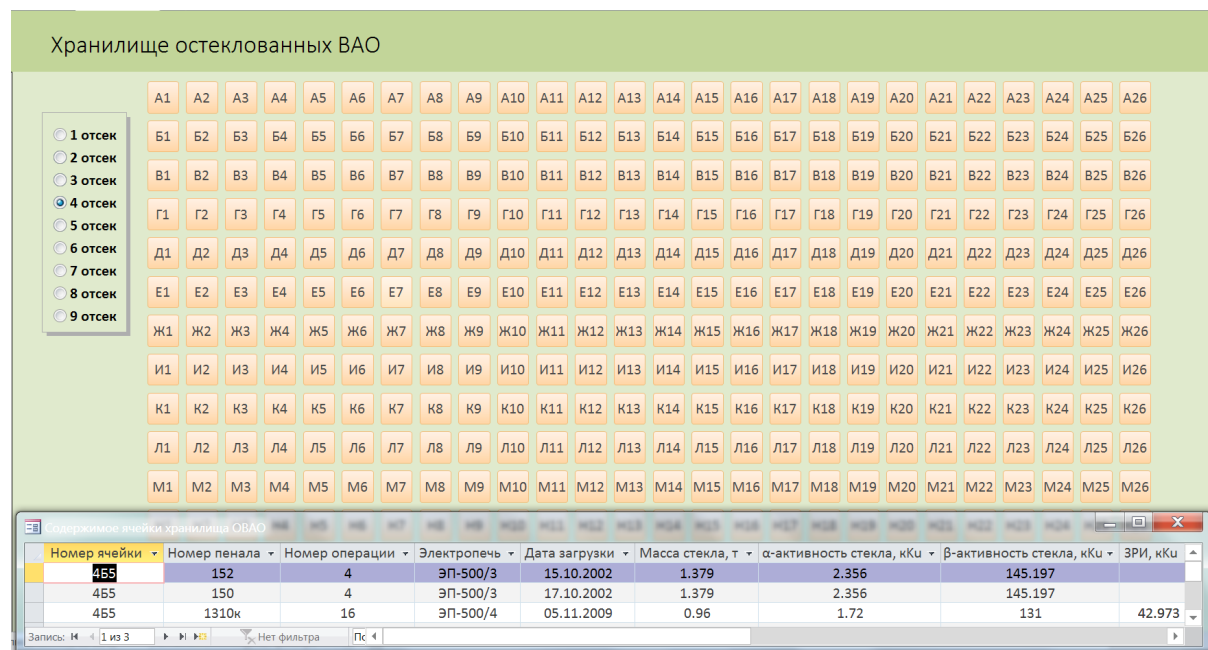


Рис. 1. Визуализация содержимого ячейки 4B5 хранилища ОВАО

**Операция**

Электропечь: ЭП-500/3

Номер операции: 7

Объем порции для операции, м³: 446.7

Обогащение по U-235, %: 1.13

Документ о готовности операции

ЭЛЕМЕНТЫ И ИХ ОКСИДЫ В СТЕКЛЕ

РАСЧЕТ СОДЕРЖАНИЯ РЗРН В ОСТЕКЛОВАННЫХ ВАО

Объемная активность, Ки/дм³: Альфа: 0.351, Бета: 18.1

Суммарная активность, Ки: Альфа: 1.57E+05, Бета: 8.09E+06

Радионуклидный состав, Ки/дм³: Cs-137: 10.27, Cs-134: 0.34, Eu-154: 0.234, Ru-106: 0.123

Заккрыть

Электропечь	Номер ячейки	Номер пенала	Номер операции	Дата загрузки	Масса стекла, т	α-активность стекла, кКи	β-активность стекла	ЗРИ, кКи
ЭП-500/3	4Ж3	360	7	30.04.2003	1.423	1.914	100.068	
ЭП-500/3	4Ж3	365	7	30.04.2003	1.423	1.914	100.068	
ЭП-500/3	4Ж5	366	7	01.05.2003	1.486	1.937	105.515	
ЭП-500/3	4Ж5	367	7	01.05.2003	1.486	1.937	105.515	
ЭП-500/3	4Ж6	368	7	02.05.2003	1.486	1.937	105.515	
ЭП-500/3	4Ж6	369	7	03.05.2003	1.486	1.937	105.515	

Записи: 11 из 85

Рис. 2. Форма "Операция" с параметрами для электропечи ЭП-500/3, номер "операции" 7

**Содержания РЗРН в отдельных упаковках (пенах) по операции 11**

Электропечь: ЭП-500/5

Номер операции: 11

НОМЕР ПЕНАЛА: 700-M

РЗРН	По бета-активности, Бк	По Cs-137, Бк	Номер пенала	Номер ячейки	Дата загрузки	РЗРН	По бета-активности, Бк	По Cs-137, Бк
C-14	4.69E+06	4.19E+06	694-M	8/12	12.06.2018	Np-237	1.35E+10	1.21E+10
Cl-36	9.20E+08	8.21E+08	695-M	8/11	13.06.2018	Am-241	7.73E+13	6.89E+13
Ni-59	1.97E+09	1.76E+09	696-M	8/10	14.06.2018	Am-243	9.70E+11	8.65E+11
Ni-63	2.60E+11	2.32E+11	697-M	8/9	15.06.2018	U-233	0	0
Se-79	2.67E+10	2.38E+10	698-M	8/8	16.06.2018	U-234	0	0
Sr-90	2.13E+15	1.90E+15	699-M	8/7	16.06.2018	U-235	0	0
Mo-93	2.80E+08	2.50E+08	700-M	8/6	18.06.2018	U-236	0	0
Zr-93	6.83E+10	6.09E+10	701-M	8/5	18.06.2018	U-238	0	0
Nb-94	3.36E+05	3.00E+05	702-M	8/4	18.06.2018	Pu-238	0	0
Tc-99	5.13E+11	4.58E+11	703-M	8/3	19.06.2018	Pu-239	0	0
Pd-107	4.52E+09	4.03E+09	704-M	8/2	20.06.2018	Pu-240	0	0
Ag-108m	3.23E+08	2.88E+08	705-M	8/1	20.06.2018	Pu-241	0	0
Sn-121m	7.92E+10	7.07E+10	706-M	8M1	21.06.2018	Pu-242	0	0
Sn-126	2.16E+10	1.93E+10	707-M	8M2	22.06.2018	Cm-243	6.47E+11	5.77E+11
I-129	1.26E+09	1.12E+09	708-M	8M3	22.06.2018	Cm-244	9.37E+13	8.36E+13
Cs-135	1.78E+10	1.59E+10				Cm-245	9.20E+09	8.21E+09
Cs-137	3.21E+15	2.86E+15				Cm-246	2.45E+09	2.19E+09

Рис. 3. Расчёт содержания РЗРН в пенах с ОВАО по "операции" 11 для электропечи ЭП-500/5

Элементы и их оксиды в стекле		Электропечь		ЭП-500/5	
Элементный состав раствора, г/дм³		Номер операции		14	
U	2.829	Состав раствора по оксидам, г/дм³		Состав стекла, %	
Pu	0.0298				
HNO <sub>3</sub>	165.9	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	3.336	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	1.756%
Na	35.4	PuO <sub>2</sub>	0.034	PuO <sub>2</sub>	0.018%
Al	14.6	Na <sub>2</sub> O	47.684	Na <sub>2</sub> O	25.103%
P	46.5	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	27.565	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	14.512%
Fe	1.11	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	106.485	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	56.059%
Ni	0.45	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.585	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.834%
Cr	0.28	NiO	0.572	NiO	0.301%
Ca	0.33	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.409	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.216%
Mn	0.056	CaO	0.462	CaO	0.243%
Mo	0.28	MnO <sub>2</sub>	0.089	MnO <sub>2</sub>	0.047%
Cs	0.15	MoO <sub>3</sub>	0.420	MoO <sub>3</sub>	0.221%
Ru	0.167	Cs <sub>2</sub> O	0.159	Cs <sub>2</sub> O	0.084%
Rh	0.039	RuO <sub>2</sub>	0.220	RuO <sub>2</sub>	0.116%
Pd	0.0167	Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.048	Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.025%
Cl <sup>-</sup>	0.29	PdO	0.019	PdO	0.010%
F <sup>-</sup>	0.1	SO <sub>3</sub>	0.650	SO <sub>3</sub>	0.342%
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.78	ΣРЗЭ	0.250	ΣРЗЭ	0.113%
ΣNO <sub>3</sub>	428.9				
ΣРЗЭ	0.215				

Рис. 4. Элементный состав и их оксиды в стеклообразующем растворе для электропечи ЭП-500/5, номер "операции" 14

отработанных ЗИИИ в пеналах хранилища ОВАО (рис. 6):

- номер ячейки;
- номер пенала;
- дата загрузки отработанных ЗИИИ в пенал хранилища ОВАО;
- активность отработанных ЗИИИ на дату загрузки в пенал хранилища ОВАО;
- тип отработанных ЗИИИ;
- состав радионуклидов в отработанных ЗИИИ;
- паспортные данные отработанных ЗИИИ (дата изготовления, активность на дату изготовления).

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана "Автоматизированная база данных ОВАО ФГУП "ПО "Маяк", которая

содержит всю доступную аналитическую информацию об остеклованных ВАО, создана система характеристики ОВАО. Предложенный расчётный метод позволяет получить предварительную информацию о содержании РЗРН по всему массиву упаковок (пеналов) с ОВАО. Результаты расчётов могут быть использованы при паспортизации упаковок (пеналов) ОВАО и при обосновании долговременной безопасности ПГЗРО.

По мере возникновения новых задач и получения новых данных расширяется функционал БД посредством добавления новых программных модулей, отображённых в виде новых форм и отчётов.

"Автоматизированная база данных остеклованных высокоактивных растворов ФГУП "ПО "Маяк" имеет свидетельство о государственной регистрации базы данных от

Сводные данные по хранилищу остеклованных ВАО						14 июля 2023 г.
Электропечь	Номер операции	Масса стекла, т	ЗРИ, кКи	Всего пеналов	Короткие пеналы	Контейнеры
ЭП-500/2	1	11.200		7	0	21
	2	17.300		11	0	33
	3	1.200		1	0	3
	4	15.600		13	0	39
	5	58.440		43	0	129
	6	59.420		48	0	144
Итого для ЭП-500/2		163.160		123	0	369
ЭП-500/1-р	0	82.820		58	0	174
	1	51.340		37	0	111
	2	59.007		39	0	117
	3	73.104		48	0	144
	4	64.846		42	0	126
	5	65.712		44	0	132
	6	88.867		59	0	177
	7	76.997		52	0	156
	8	69.300		48	0	144
	9	94.575		66	0	198
	10	82.200		55	0	165
	11	72.415		51	0	153
	12	82.927		56	0	168
	13	86.430		58	0	174
	14	84.948		58	0	174
	15	69.316		52	0	156
	16	86.682		68	0	204
	17	81.744		61	0	183
	18	95.545		71	0	213
	19	66.925	22.050	50	0	150
	20	70.180		50	0	150
	21	93.350		70	0	210
	22	69.170	39.730	52	0	156
	23	85.552	41.044	64	0	192
	24	83.457	44.505	64	0	192

Рис. 5. Отчёт о сводных данных по пеналам хранилища ОВАО по электропечам

Федеральной службы по интеллектуальной собственности № 2022620300, дата гос. регистрации в Реестре баз данных – 08.02.2022.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Постановление Правительства Российской Федерации от 19 октября 2012 года № 1069 "О

критериях отнесения твёрдых, жидких и газообразных отходов к радиоактивным отходам, критериях отнесения радиоактивных отходов к особым радиоактивным отходам и к удаляемым радиоактивным отходам и критериях классификации удаляемых радиоактивных отходов".  
2. НП-093-14: Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения: утв. при-



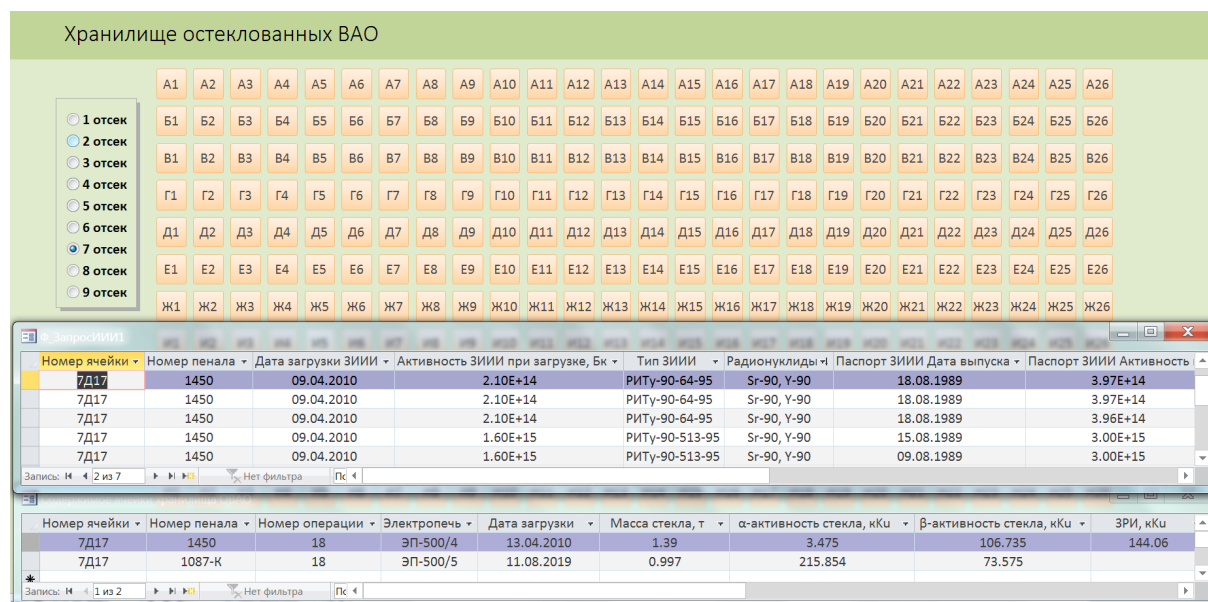


Рис. 6. Форма визуализации содержимого ячейки хранилища ОВАО и информации об отработанных ЗИИИ

казом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору от 15 декабря 2014 г. № 572.

3. Федеральный закон от 11 июля 2011 г. № 190-ФЗ "Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации".

4. Самойлов А.А., Блохин П.А., Болдырев К.А. и др. Методический подход к определению радиологически значимых радионуклидов для оценки долговременной безопасности пунктов захоронения радиоактивных отходов // Вопросы радиац. безопасности. – 2017. – № 3. – С. 21–31.

5. Богатов С.А., Блохин П.А., Уткин С.С. и др. Усреднённые оценки удельной активности и тепловыделения остеклованных высокоактивных

отходов, накопленных на ФГУП "ПО "Маяк" // Вопросы радиац. безопасности. – 2021. – № 3. – С. 3–12.

6. Ремизов М.Б., Козлов П.В., Борисенко В.П. и др. Расчётные оценки содержания радиологически значимых радионуклидов в остеклованных ВАО ФГУП "ПО "Маяк" / Сборник докладов V научно-технического семинара "Проблемы переработки и кондиционирования радиоактивных отходов". 20–24 июня 2022 г., г. Санкт-Петербург. – С. 98–104.

7. Ремизов М.Б., Козлов П.В., Борисенко В.П. и др. Разработка алгоритма оценки радионуклидного состава остеклованных ВАО ФГУП "ПО "Маяк" для цели их безопасного захоронения // Радиоактивные отходы. – 2018. – № 3(4). – С. 102–109.

УДК 621.039.736

© 2023

## ИССЛЕДОВАНИЕ ПЕРСПЕКТИВНЫХ СОСТАВОВ СУХОЙ СМЕСИ ДЛЯ ЦЕМЕНТИРОВАНИЯ РАСТВОРНОЙ ЧАСТИ НАКОПЛЕННЫХ ЩЕЛОЧНЫХ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

*П.В. Козлов, С.М. Шайдуллин, К.А. Феоктистов, Д.В. Маркова*

*Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

*Р.Я. Ахтямов, Р.М. Ахмедьянов*

*Россия, г. Челябинск, ООО "УралНИИСтром"*

Приводятся результаты исследования характеристик цементных растворов и компаундов, полученных при разработке технологии отверждения растворной части накопленных на ФГУП "ПО "Маяк" щелочных высокоактивных отходов (ВАО). В составе испытанных сухих смесей использованы исключительно материалы, имеющиеся в настоящее время на отечественном рынке. На модельных неактивных цементных растворах определены такие характеристики, как растекаемость, водоотделение, конец схватывания, тепловыделение, а на компаундах – прочность на сжатие, морозостойкость и водостойкость. На цементных компаундах с реальными отверждёнными высокоактивными растворами установлена скорость выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$ . Разработан состав, обеспечивающий соответствие цементированных РАО всему комплексу нормативных и технологических требований при условии размещения компаунда в контейнерах ограниченного объёма (например, в контейнерах типа НЗК).

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ЖИДКИЕ РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ, СУХИЕ СМЕСИ, ШЛАКО-ЩЕЛОЧНЫЕ ВЯЖУЩИЕ СИСТЕМЫ, БЕНТОНИТ, ВЕРМИКУЛИТ, ЦЕМЕНТИРОВАНИЕ, ЦЕМЕНТНЫЕ КОМПАУНДЫ, ФИЗИКО-МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА, ВЫЩЕЛАЧИВАНИЕ

На радиохимическом производстве ФГУП "ПО "Маяк", помимо генерируемых в результате текущей переработки ОЯТ жидких радиоактивных отходов, накоплено значительное количество высокоактивных растворов и суспензий, образовавшихся в ходе прошлой производственной деятельности. Обращение с высокоактивными отходами до 1987 г. подразумевало их предварительное упаривание и переработку по осадительной технологии. Получаемые ферроцианидные, гидроксидные, сульфидные осадки, содержащие основную массу радионуклидов, передавались в виде суспензий в ёмкости-хранилища [1]. На сегодняшний день объём жидких отходов, накопленных в ёмкостях-хранилищах на предприятии, составляет 14000 м<sup>3</sup> и представляет собой высокоминерализованную систему сложного химического состава [2].

Хранение данного типа отходов в жидком состоянии в долгосрочной перспективе не

обеспечивает надлежащего уровня их безопасности, а ликвидация посредством сброса в поверхностные водоёмы не представляется возможной ввиду неминуемого загрязнения окружающей среды [3]. Для утилизации такого типа отходов предусмотрена процедура их иммобилизации (кондиционирования) – перевод в состояние инертного твёрдого тела с последующим его захоронением. Цементирование является наиболее простой с технологической точки зрения процедурой иммобилизации, позволяющей получить конечный продукт надлежащего качества [4]. Процесс цементирования основан на смешении жидких отходов с вяжущими, преимущественно портландцементом, с использованием смесительного оборудования разного типа. В результате после отверждения смеси образуется материал, основу которого составляют кристаллические соединения гидросиликатов и гидроалюминатов кальция. Помимо клинкерных цементов, для получения

прочного композиционного материала могут использоваться шлако-щелочные вяжущие, состоящие из тонкодисперсных шлаков металлургической промышленности, затворяемых концентрированными растворами щелочей [5]. Преимущество данной технологии заключается в том, что металлургические шлаки являются многотоннажными побочными продуктами, стоимость которых значительно ниже стоимости портландцемента. Радиоактивные жидкие отходы, в свою очередь, могут выполнять роль затворителя, если водородный показатель раствора соответствует щелочным и сильнощелочным средам. Для решения этого вопроса специалистами ФГУП "ПО "Маяк" разработана комплексная схема переработки растворной части накопленных высокоактивных отходов, включающая предварительную фильтрацию раствора от  $\alpha$ -излучающих радионуклидов, сорбционное извлечение основного дозобразующего компонента –  $^{137}\text{Cs}$ , и дальнейшее цементирование образующихся растворов, относящихся к категории среднеактивных отходов, в шлако-щелочные цементные матрицы [6].

К реологическим свойствам цементных растворов предъявляется ряд требований, позволяющих обеспечивать равномерное заполнение контейнеров (или отсека) для их хранения. К числу таких требований относится растекаемость, водоотделение и время схватывания цементного раствора. Затвердевшие цементные компаунды должны обладать физико-механическими свойствами, обеспечивающими высокую стойкость к возможным внешним воздействиям. Данные требования регламентируются НП-019-15 [7], к ним относится морозостойкость, водостойкость и прочность при сжатии цементного компаунда, а также скорость выщелачивания из него радионуклида  $^{137}\text{Cs}$ . Для цементных растворов, захоронение которых планируется производить в отсеках большого объема, предъявляются дополнительные требования:

- пониженное тепловыделение, во избежание чрезмерного нагрева компаунда, так как это может привести к растрескиванию материала из-за градиента температур и нанести ущерб несущим конструкциям самого хранилища, для безопасности эксплуатации железобетонного

каркаса хранилища предельной температурой считается  $90^\circ\text{C}$  [8];

- растекаемость не менее 20 см, чтобы обеспечить заполнение отсека размерами  $5,5 \times 5,5$  м при минимальном водоотделении (менее 1 % по объёму) в ходе затвердевания [9].

Согласно опытным данным, полученным специалистами ФГУП "ПО "Маяк", эффективным видом минеральной добавки, сорбирующей и удерживающей  $^{137}\text{Cs}$  при цементировании растворной части радиоактивных отходов со средним уровнем активности, содержанием солей от 290 до  $317 \text{ г/дм}^3$ , является бентонит [10]. Бентониты – это полезные ископаемые, представляющие собой тонкодисперсные высокопластичные осадочные породы преимущественно смектитового состава и обладающие (в различной степени) связующими, тиксотропными и сорбционными свойствами. Обычно это плотные, вязкие, жирные на ощупь породы с оскольчатой или полураковистым изломом самых разнообразных цветов – от белого до чёрного (обычно голубые, зелёные и жёлтые тона); с водой образуют гель, при высыхании которого на поверхности образуется трещиноватая корочка. В воде бентониты набухают (щелочные) или распадаются на мелкие частицы (щёлочнотемельные) [11–13]. Кроме смектитов (главным образом монтмориллонита и бейделлита) в бентонитах могут присутствовать гидрослюда, смешаннослойные образования состава гидрослюда-монтмориллонит, каолинит, палыгорскит, нонтронит, цеолиты, кристобалит, кальцит, кварц, полевые шпаты. В зависимости от состава обменного комплекса различают щелочные (натриевые и кальций-натриевые) и щёлочнотемельные (кальциевые, магний-кальциевые, кальций-магниевые) бентониты. Это различие обусловлено особенностями кристаллического строения смектитов. Их кристаллическая решётка построена из трёхслойных пакетов, каждый из которых состоит из двух слоёв кремнекислородных тетраэдров и заключённого между ними слоя алюмокислородных октаэдров. Изоморфные замещения атомов в октаэдрическом и реже в тетраэдрическом слоях приводят к нарушению электронной нейтральности кристаллической структуры и появлению у неё избыточного отрицательного заряда, который компенсируется катионами,

расположенными в межпакетном пространстве. Если оно заполнено одновалентными ионами (главным образом, натрием), то расстояние между пакетом составляет примерно 1,2-1,3 нм, двухвалентными (кальцием, магнием) – около 1,4-1,5 нм. Кроме катионов металлов в межпакетном пространстве располагаются молекулы воды, увеличение числа которых приводит к расширению кристаллической решётки (набуханию) до полного разъединения пакетов. Межпакетные катионы могут вытесняться и замещаться другими. Благодаря такому строению кристаллической решётки смектиты (а следовательно, и сложенные ими глины – бентониты) обладают многими специфическими свойствами, наиболее ценное из которых – ионообменная способность. Все эти факторы обуславливают сорбционную активность бентонитов. В природном виде бентониты редко применяют в качестве сорбентов, их сорбционную активность, как правило, повышают обработкой кислотами (реже термообработкой). Кислотная активация удаляет обменные катионы, место которых занимают ионы водорода. Последние вытесняют из октаэдрических позиций атомы магния, железа и алюминия. Активация увеличивает удельную поверхность бентонита и изменяет структуру порового пространства.

К минусам применения в качестве сорбента бентонита можно отнести склонность цементного компаунда к усадочным деформациям и трещинообразованию. Бентонит является тонкодисперсной глиной, при его введении в состав цементирующей смеси повышается её водопотребность. С точки зрения утилизации жидких радиоактивных отходов, эта особенность может являться преимуществом, так как она будет способствовать повышению степени включения солей в цементный компаунд. Однако при условии отсутствия в составе смеси крупнодисперсных частиц, которые могли бы выполнять роль заполнителя, бетонитосодержащий компаунд в процессе затвердевания будет претерпевать значительные усадочные деформации, вызванные испарением избытка влаги и контракцией, которые также могут сопровождаться интенсивным трещинообразованием.

Целью данной работы являлось определение возможности использования сухой

шлако-бентонитовой смеси для цементирования растворной части радиоактивных отходов сложного химического состава, являющихся водной высокоминерализованной системой с концентрацией солей 650–700 г/дм<sup>3</sup>, и исследование возможности полной замены в ней бентонита на альтернативный вид сорбента.

В качестве сорбента, являющегося альтернативой бентониту, было принято решение использовать вермикулит (минерал из группы гидрослюд, имеющих слоистую структуру), продукт вторичного изменения (гидролиза и последующего выветривания) тёмных слюд биотита и флогопита. Процесс адсорбции ионов тяжёлых металлов на вермикулите может протекать в соответствии с одним из представленных механизмов: первый из них – это катионный обмен на плоских участках, имеющий место в результате реакции ионов металлов с постоянным отрицательным зарядом (комплексами внешней среды), а второй – это образование внутрисферных комплексов через Si-O- и Al-O-группы на краях частиц.

Механизм адсорбции загрязняющих веществ на вермикулитовом сорбенте достаточно сложен и включает ван-дер-ваальсовы взаимодействия между сорбируемыми веществами и развитой поверхностью вермикулита, а также кулоновские взаимодействия между заряженными, поляризованными молекулами и заряженными участками поверхности сорбента.

При ионной адсорбции металлов на полярных сорбентах минерального происхождения большое значение имеет химическая природа сорбента. На твёрдой поверхности будет происходить адсорбирование ионов, имеющих единую атомную группировку с этой поверхностью или изоморфную с ней. Доказано [14], что образуются донорно-акцепторные комплексы хелатного типа, где атомы кислорода являются донорами, а ионы металлов – акцепторами. С учётом данных РФА и ИК-спектроскопии можно предполагать, что основной механизм адсорбции ионов металлов на поверхности вермикулита может выглядеть следующим образом (рис. 1).

Высокая сорбционная способность по отношению к ионам <sup>137</sup>Cs природного вермикулита и его эффективность в сравнении с глинистыми сорбентами отмечена в работах зарубежных

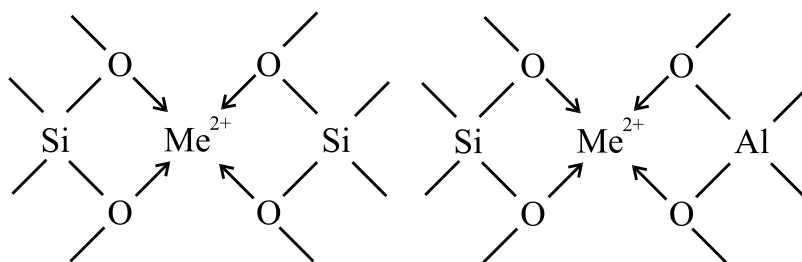


Рис. 1. Механизм образования донорно-акцепторных комплексов хелатного типа [14]

учёных [15–17]. В работе [16] также предложен вариант модификации вермикулита путём его обработки этиламиноом. По результатам исследований авторами было выявлено повышение сорбционной способности модифицированного вермикулита до 78,17 мг/г по сравнению с показателем природного вермикулита, равным 56,92 мг/г. В исследованиях [17] установлено, что показатели эффективности десорбции  $^{137}\text{Cs}$  в дистиллированной воде из природного вермикулита относительно невелики и составляют примерно 1-2 %.

В данной работе было принято решение использовать метод термической и механической активации природного вермикулита для повышения его сорбционной способности. При обжиге природного вермикулита до температур 400–1000 °С получают вспученный вермикулит. Отдельные зёрна породы расслаиваются на пластинчатые частицы, вспучиваются, увеличиваясь в объёме в 15–20 раз.

Такое поведение материала определено содержанием в нём связанной воды, которая при обжиге превращается в пар, раздвигая пластинки слюды. Материал, получаемый при обжиге вермикулитового концентрата, является сыпучим, лёгким высокопористым продуктом в виде чешуйчатых частиц серебристого или золотистого цвета. Он обладает высокими тепло- и звукоизоляционными свойствами, не токсичен, не подвержен гниению и препятствует распространению плесени, не имеет запаха [18–22].

Данные о применении вспученного вермикулита в качестве сорбента при разработке состава сухой смеси для цементирования растворной части радиоактивных отходов сложного химического состава в литературе

отсутствуют, в связи с чем необходима экспериментальная проверка возможности его использования в таких системах.

В ходе проверки и оптимизации ранее разработанного специалистами ФГУП "ПО "Маяк" базового состава сухой шлако-бентонитовой смеси, кроме возможности введения вермикулита вместо бентонита, экспериментально проверяли также влияние комбинаций следующих факторов на свойства раствора и компаунда:

- варьирование величины раствороцементного отношения (РЦО);
- увеличение дозировки пластифицирующей добавки СП-1.

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

При проведении исследований применяли модельный раствор, имитирующий растворную часть накопленных на радиохимическом производстве ФГУП "ПО "Маяк" высокоактивных отходов, изготовленный по методике, разработанной специалистами данного предприятия. Варианты обращения с растворной частью ВАО включают цементирование с предварительным упариванием растворной части до солесодержания 600–700 г/дм<sup>3</sup> [23]. Состав модельного раствора приведён в табл. 1. При изготовлении модельного раствора осуществляли контроль плотности с помощью ареометра, при необходимости доводили плотность до 1,295 г/см<sup>3</sup> с помощью добавления дистиллированной воды.

В качестве основных компонентов сухих смесей для цементирования жидких радиоактивных отходов использовали материалы, име-



Таблица 1

Состав модельного раствора

NaOH	Na <sup>+</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	AlO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	CrO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	SiO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	K <sup>+</sup>	Cs <sup>+</sup>	Солесодержание, г/дм <sup>3</sup>	Плотность, г/см <sup>3</sup>
200	202	220	70	26	3,0	1,8	1,0	1,2	0,1	670	1,295

ющиеся в настоящее время на отечественном рынке:

– шлак доменный гранулированный молотый – добавка минеральная активная ЕСОFIL-480, ТУ 23.99.19-014-99126491-2020, ООО "Мечел-Материалы", г. Челябинск (далее – доменный шлак);

– бентонит ПБМБ – глинопорошок бентонитовый, марка ПБМБ, ТУ 39-0147001-105-93, изм. № 1–12, ООО "Бентонит Урала", г. Курган (далее – бентонит);

– суперпластификатор "Полипласт СП-1", ТУ 5870-005-58042865-05, изм. № 1, 2 (в форме порошка), ООО "Полипласт-УралСиб", г. Первоуральск Свердловской области (далее – СП-1);

– вспученный вермикулит М-150, ГОСТ 12865-67, ООО "Уралвермикулит", Потанинское месторождение, г. Кыштым Челябинской области (далее – вермикулит М-150).

При проведении экспериментов модельный раствор готовили порциями по 10 дм<sup>3</sup>, перед применением контролировали плотность модельного раствора ареометром. Сухую смесь перемешивали до однородного состояния не менее 10 мин в смесителе принудительного перемешивания.

Опытным путём был выбран следующий режим перемешивания при приготовлении цементных растворов в лабораторных условиях (рис. 2): заранее взвешенный модельный раствор выливали в смеситель с планетарным движением лопасти, при медленном перемешивании в течение минуты высыпали сухую смесь, включали режим высокоскоростного смешения на 1 мин, останавливали и в течение 30 сек измеряли распыл растворной смеси. Объём одного замеса в лабораторном смесителе рассчитывали, исходя из 1,5 кг сухой смеси.

Первый этап работы заключался в проверке характеристик цементных растворов, полученных на основе сухих смесей базового и экспериментального составов, для оценки их

соответствия базовым требованиям (табл. 2), а также для оценки эффективности модифицирования базового состава сухой смеси.

На основе результатов исследований, полученных после выполнения данного этапа, выбирали оптимальные составы сухих смесей, максимально удовлетворяющих требованиям НП-019-15, для дальнейшей проверки нормируемых эксплуатационных характеристик компаундов (табл. 3) путём проведения испытаний по стандартным методикам после твердения в нормальных условиях в течение 28 сут.

Дополнительно с помощью изотермического калориметра Tam Air (TA Instruments, производство США), определяли тепловыделение при твердении цементных растворов на основе оптимальных составов. Предпочтительный показатель тепловыделения компаунда составляет не более 80 Дж/г при его захоронении в отсеках большого объёма [24].

Для проведения испытаний по определению химической устойчивости кубических образцов цементных компаундов использовали реальную растворную часть высокоактивных отходов ёмкостей-хранилищ ФГУП "ПО "Маяк". Объёмная активность радионуклида <sup>137</sup>Cs в данном виде отходов составляет порядка 10<sup>10</sup> Бк/дм<sup>3</sup>. Перед началом испытаний раствор был предварительно профильтрован через бумажный фильтр "синяя лента" для удаления взвесей. Затем отфильтрованный раствор ВАО подвергался упариванию на водяной бане до двукратного уменьшения объёма. Солесодержание в таком растворе составляет 650–700 г/дм<sup>3</sup>. После остывания упаренный раствор (ρ = 1,316 г/см<sup>3</sup>) вводили в тщательно гомогенизированную сухую смесь и перемешивали до получения однородного теста (РЦО = 0,55 см<sup>3</sup>/г). Время перемешивания цементного теста составляло 5–10 мин. После перемешивания цементное тесто укладывали в формы с размером ячеек 2×2×2 см. Для удаления воздушных полостей компаунд ви-





Рис. 2. Приготовление цементного раствора в лабораторном смесителе с планетарным движением лопасти

Таблица 2

Базовые требования, предъявляемые к характеристикам цементных растворов, методы их определения

Характеристика	Нормативный показатель	Метод испытания
Растекаемость раствора по расплыву кольца	Не менее 20 см	По ГОСТ 310.4, п.2.1. Для проведения испытания готовили пробу раствора, наполняли конус цементным раствором доверху и сразу плавно, но энергично, поднимали конус вертикально вверх не менее чем на высоту конуса. В качестве показателя растекаемости принимали средний диаметр расплыва цементного раствора.
Водоотделение раствора	Не более 1 % от объёма раствора	По ГОСТ 34532, п.3.6
Конец схватывания раствора	Не более 24 ч	По ГОСТ 310.3, п.2
Плотность раствора	—	По ГОСТ 5802, п.3

броуплотняли. Формы с образцами помещали в эксикатор в воздушно-влажные условия на 28 сут для твердения. После окончания твердения образцы извлекали из форм, выдерживали на воздухе в течение суток, определяли гео-

метрические размеры, массу, после чего проводили испытания на химическую стойкость согласно ГОСТ Р 52126–2003.

Для определения химической устойчивости компаундов было приготовлено по два

Таблица 3

Нормируемые по НП-019-15 эксплуатационные характеристики цементных компаундов и методы их определения

Эксплуатационная характеристика	Нормативный показатель в возрасте 28 сут	Методы испытаний
Прочность на сжатие компаунда в возрасте 28 сут	Не менее 5 МПа	По ГОСТ 310.4, п.2.2
Морозостойкость	Не менее 5 МПа	По ГОСТ 10060 и ОИ 001.915. Основные образцы цементного компаунда насыщали водой, подвергали циклическому замораживанию при -40 °С в морозильной камере не менее 2 ч и оттаиванию на воздухе при +40 °С не менее 2 ч (всего 30 циклов)
Водостойкость	Не менее 5 МПа	По ГОСТ 310.4 и ОИ 001.917. Основные образцы цементного компаунда помещали в дистиллированную воду на 90 сут при комнатной температуре
Плотность	–	По ГОСТ 5802, п.7
Скорость выщелачивания	Не более $10^{-3}$ г/(см <sup>2</sup> ·сут)	По ГОСТ Р 52126 п.п. 2.1.2.2

образца цементного компаунда для данных сухих смесей. Активность радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  в цементных образцах составила  $1,17 \cdot 10^7$  Бк/г.

В процессе эксперимента отбирали пробы сред выщелачивания, измеряли активность радионуклида  $^{137}\text{Cs}$ , перешедшего в контактный раствор за данный интервал времени. Активность выщелоченного  $^{137}\text{Cs}$  в растворах определяли на полупроводниковом спектрометре энергии  $\gamma$ -излучения типа СЕГ-01 КП-ИФТП. По результатам определения объёмной активности  $^{137}\text{Cs}$  в контактном растворе были рассчитаны скорость и степень выщелачивания.

#### ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКАЯ ЧАСТЬ

Для составов с альтернативным сорбентом количество вспученного вермикулита подбирали, исходя из условия обеспечения близкой плотности цементного раствора по сравнению с базовым составом. Сохранение плотности осуществляли с целью исключения значительного различия с базовым составом по выходу цементного раствора, плотности и прочности цементного компаунда. Для предотвращения всплытия вспученного вермикулита в цемент-

ном растворе и обеспечения однородности отдозированные компоненты сухих смесей с вермикулитом перемешивали в сухом состоянии на высокоскоростном смесителе. В ходе механического воздействия на вермикулит наблюдаются не только процессы диспергирования частиц, но и изменение их структуры за счёт расслоения слоистого пакета вермикулита. Механоактивация вермикулита приводит к взаимодействию между кристаллами, накоплению энергии, росту дефектов в кристаллической решётке материала, удельной поверхности и сорбционной ёмкости [25].

Составы смесей, используемых в данном исследовании, и показатели базовых исследуемых характеристик приведены в табл. 4.

По результатам первого этапа работы для проведения дальнейших исследований в качестве оптимальных были выбраны составы:

- У3 как состав, наиболее приближенный к базовому составу, несмотря на отсутствие необходимой растекаемости;
- У4 как состав с увеличенным количеством СП-1 для обеспечения требуемой растекаемости;
- У8 как состав на вермикулите, обе-

спечивающий все основные характеристики цементного раствора и компаунда.

Цементный раствор состава У3 представляет собой тиксотропную, густую массу с низкой первоначальной подвижностью и с высокой скоростью потери первоначальной подвижности. Низкая первоначальная подвижность характеризуется низким значением РЦО и низким содержанием пластификатора СП-1. Быстрая потеря первоначальной подвижности связана с наличием в составе бентонита, кото-

рый при взаимодействии с водой набухает, что приводит к повышению вязкости.

Цементные растворы составов У4 и У8 представляют собой литые, подвижные смеси с высокой первоначальной подвижностью. Цементный раствор состава У4 имеет высокую скорость потери первоначальной подвижности, а состав У8 – несколько меньшую скорость потери первоначальной подвижности.

На рис. 3 представлены фотографии определения растекаемости для состава У4. Для

Таблица 4

Составы У1–У8 и характеристики растворяемых смесей

Материалы	Расход материалов, кг на 1 т сухой смеси							
	У1	У2	У3	У4	У5	У6	У7	У8
Шлак доменный	897	897	897	875	970	970	970	960
Бентонит	100	100	100	100	–	–	–	–
СП-1	3	3	3	25	15	15	15	25
Вермикулит М-150	–	–	–	–	15	15	15	15
РЦО	0,6	0,7	0,8	0,875	0,6	0,7	0,8	0,875
<b>Характеристики</b>								
Расплыв 30 с (ср.), мм	100	100	130	250	103	113	188	215
Плотность цементного раствора, кг/л	2,01	1,95	1,90	1,75	1,94	1,92	1,83	1,72



Рис. 3. Цементный раствор состава У4

Таблица 5

Результаты испытаний цементных растворов и цементных компаундов составов У3, У4, У8

<b>Материалы/составы</b>	<b>У3</b>	<b>У4</b>	<b>У8</b>
Доменный шлак, % по массе	89,7	87,5	96,0
Бентонит, % по массе	10,0	10,0	0
СП-1, % по массе	0,3	2,5	2,5
Вермикулит М-150, % по массе	0	0	1,5
Раствороцементное отношение, кг/кг	0,800	0,875	0,875
Степень включения компонентов ЖРО, % масс.	23	25	25
<b>Характеристики цементного раствора</b>			
Растекаемость через 30 с, мм	145	240	225
Плотность растворной смеси, кг/м <sup>3</sup>	1800	1750	1750
Водоотделение, %	0	0	0
Конец схватывания – не более 24 ч	соотв.	не соотв.	соотв.
<b>Характеристики затвердевших компаундов при нормальном твердении</b>			
Тепловыделение за 7 сут, Дж/г	92,6	61,3	79,2
Прочность на растяжение при изгибе в 28 сут, МПа	4,0	2,2	2,7
Прочность на сжатие в 28 сут, МПа	16,1	13,6	13,2
Плотность в 28 сут, кг/м <sup>3</sup>	1800	1735	1725
<b>Морозостойкость</b>			
Прочность на сжатие контрольных образцов, МПа	19,3	14,5	13,5
Прочность на сжатие основных образцов, МПа	14,7	7,5	10,8
Изменение прочности на сжатие, %	-23,5	-48,2	-20,4
<b>Водостойкость</b>			
Прочность на сжатие контрольных образцов, МПа	17,5	12,3	13,0
Прочность на сжатие основных образцов, МПа	21,1	16,2	16,1
Изменение прочности на сжатие, %	+20,6	+31,4	+23,9

составов У3 и У8 определение происходило аналогичным образом.

Результаты испытаний цементных растворов и цементных компаундов составов У3, У4, У8 приведены в табл. 5.

Результаты испытаний цементного компаунда оптимальных составов на воздействие теплового потока (шкала слева) и тепловыделения (шкала справа) в течение семи суток представлены на рис. 4.

Кинетические кривые выщелачивания <sup>137</sup>Cs из цементных компаундов, полученных включением упаренных ВАО ёмкостей-хранилищ в матричную композицию, представлены на рис. 5 и 6.

Из графиков видно, что степень выщелачивания радионуклида <sup>137</sup>Cs минимальна для образцов состава У3 и У8. Скорость выщелачивания достигает нормативного значения для состава У3 на 7-е сутки, для состава У8 – на 10-е сутки эксперимента и далее снижается.

По результатам исследований можно сделать вывод, что большинство характеристик цементного компаунда состава У3 соответствует требованиям, за исключением показателя суммарного тепловыделения в течение семи суток, составляющего 92,55 Дж/г вместо предпочтительных 80 Дж/г, и растекаемости по распливу кольца растворной смеси. Следует отметить, что при реализации технологии цементиро-

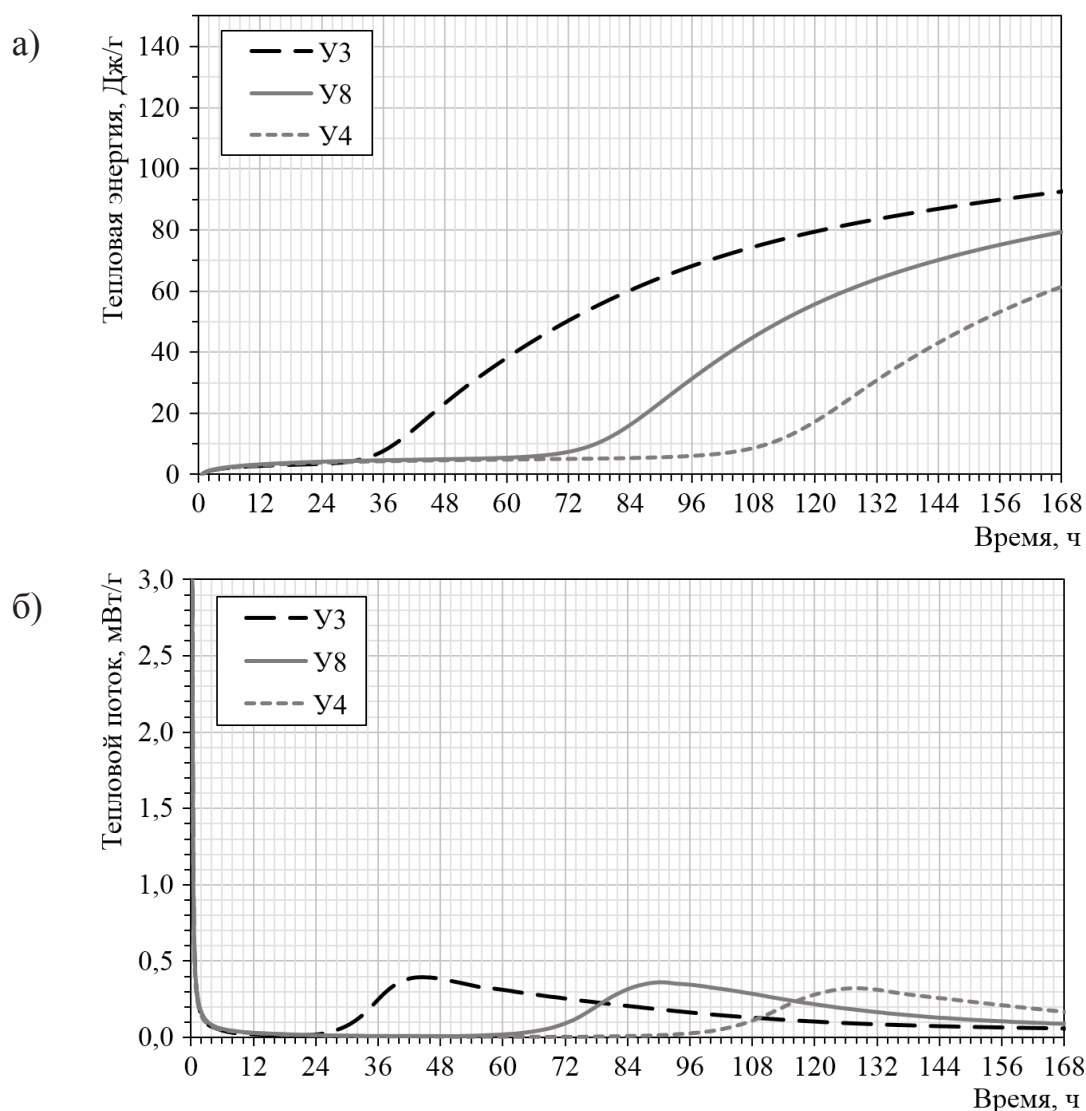


Рис. 4. Калориметрический анализ процесса твердения компаундов оптимальных составов:  
а) удельное тепловыделение; б) тепловой поток

вания ЖРО не в отсеках большого объема, а в контейнере данные показатели не будут являться критичными и указанный состав может быть выбран в качестве оптимального. Цементный компаунд состава У4 не соответствует требованиям по показателю морозостойкости после 28 сут нормального твердения в связи с падением прочности на сжатие – 48,2 %, превышаю-

щей допустимые 25 % [26]. Раствор и цементный компаунд состава У8 имеет оптимальный набор реологических и физико-механических характеристик. Скорость выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$  из образцов, изготовленных по составам У3 и У4, оказалась ниже нормативных значений ( $10^{-3} \text{ г}/(\text{см}^2 \cdot \text{сут})$ ) на 10-е сутки испытаний.

В работе [26] скорость выщелачивания



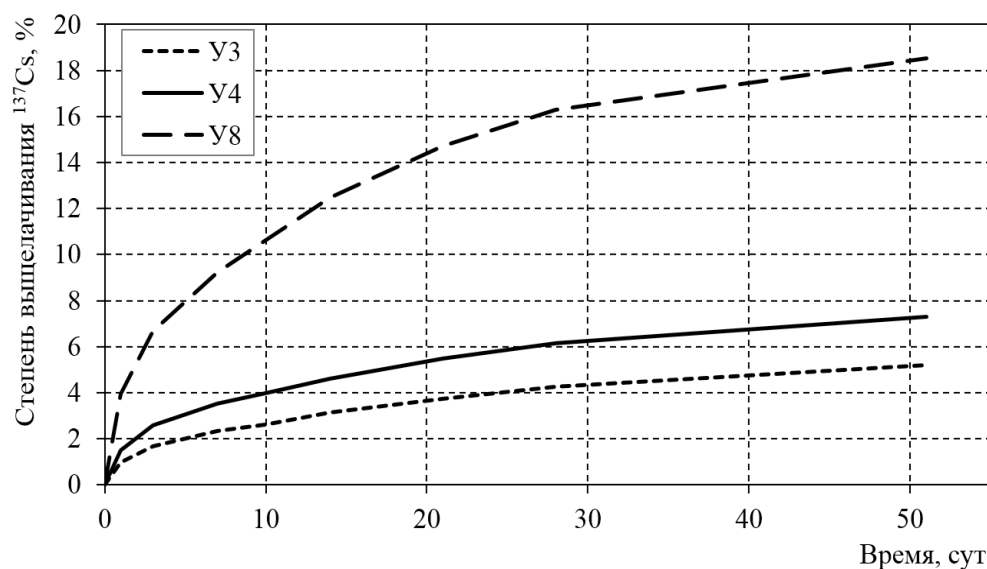


Рис. 5. Кинетические кривые степени выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$  из цементных компаундов

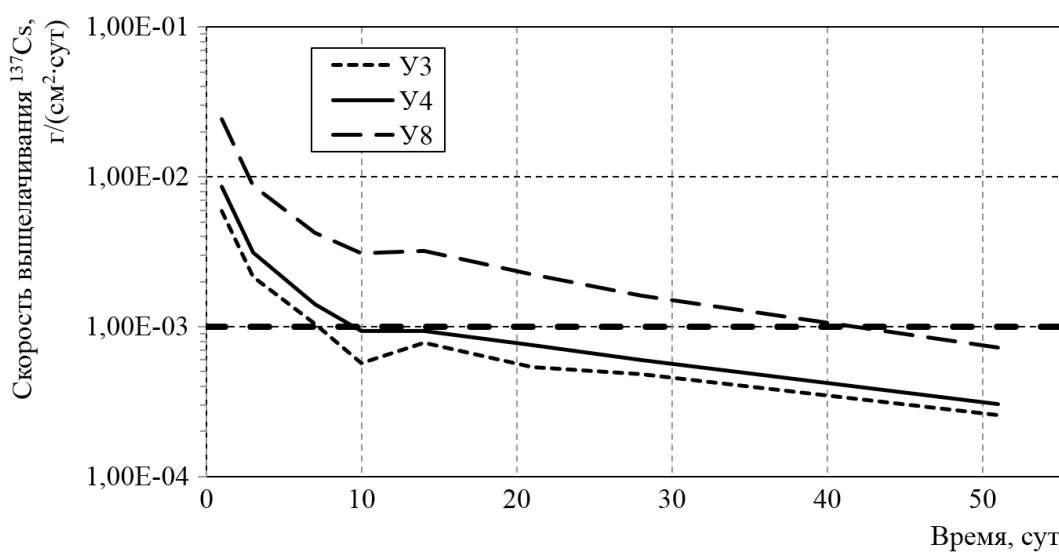


Рис. 6. Кинетические кривые скорости выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$  из цементных компаундов. Пунктирной линией обозначено нормативное значение скорости выщелачивания

$^{137}\text{Cs}$  у цементных образцов (без упаривания растворной части), содержащих добавку 10 % бентонита, снижается до значений ниже нормативных уже на 5-е сутки испытаний. Данный факт свидетельствует о значимом влиянии степени включения солевой составляющей от-

ходов (преимущественно легкорастворимых солей натрия) на прочность фиксации цезия в компаунде: увеличение степени включения солей с 12 до 25 % приводит к увеличению степени выщелачивания цезия с 0,5 до 6 % на 28-е сутки контакта с водой. Показатель скорости



выщелачивания  $^{137}\text{Cs}$  из образцов, изготовленных по составу У8, на протяжении 28 сут оставался выше нормы. Таким образом, в рамках проведённых исследований показана меньшая эффективность вермикулита (в сравнении с бентонитом) в качестве сорбционной добавки при отверждении цезийсодержащих ЖРО.

Для всех трёх составов изученных компаундов наблюдается увеличение прочности образцов в ходе длительного контакта с водой, что подтверждает сделанные ранее наблюдения для подобных систем [26].

### ВЫВОДЫ

По результатам проведённых исследований области составов цементных компаундов с отверждёнными щелочными ВАО установлено соответствие только состава У3 всем требованиям, изложенным в НП-019-15 [7]. В то же время, цементная смесь указанного состава характеризуется низкой растекаемостью (145 мм) и высокой скоростью потери первоначальной подвижности, а также повышенным тепловыделением при твердении в течение семи суток (92,55 Дж/г). С учётом этих факторов целесообразным применением компаунда состава У3 может являться цементирование жидких радиоактивных отходов в отсеках небольшого объёма (например, в контейнерах типа НЗК) при наличии системы, обеспечивающей транспортную технологичность при цементировании и укладку растворной смеси с последующим её уплотнением.

Для обеспечения возможности применения состава У3 при утилизации жидких радиоактивных отходов в ёмкостях большого объёма необходимо продолжить исследования по обеспечению высокой подвижности растворной смеси и по увеличению времени сохранения первоначальной подвижности растворной смеси, а также для снижения величины экзотермической реакции при твердении шлако-щелочного вяжущего.

Раствор и компаунд на основе состава У8 обладают характеристиками, удовлетворяющими всем требованиям, за исключением скорости выщелачивания ионов  $^{137}\text{Cs}$ . Для достижения удовлетворительного показателя данной характеристики состава У8, вероятно, необходимо

увеличить долю вспученного вермикулита, являющегося сорбентом, в его составе в совокупности с техническими мероприятиями, обеспечивающими сохранение соответствия физико-механических характеристик компаундов требованиям НП-019-15 [7]. Кроме того, представляется возможным повышение сорбционной способности вспученного вермикулита путём его дополнительной обработки.

В результате работы проверена и доказана принципиальная возможность цементирования растворной части радиоактивных отходов сложного химического состава, являющихся водной высокоминерализованной системой с концентрацией солей от 650 до 700 г/дм<sup>3</sup>. Подобранные базовые составы, на основе которых возможно проведение более глубоких исследований по уточнению оптимального вида вяжущего, сорбционного компонента и комплекса технологических добавок для получения универсальных составов для цементирования таких типов отходов.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Козлов П.В., Ремизов М.Б., Логунов М.В., Колтышев В.Е. Варианты реализации технологии предварительной подготовки осветлённой фазы ёмкостей-хранилищ накопленных ВАО к отверждению // Вопросы радиац. безопасности. – 2013. – № 2. – С. 34–47.
2. Логунов М.В., Карпов В.И., Дружинина Н.Е., Тананаев И.Г. Подходы к переработке высокоактивных пульп, накопленных на ФГУП "ПО "Маяк" // Вопросы радиац. безопасности. – 2011. – № 1. – С. 15–28.
3. Рыбальченко А.И., Курочкин В.М., Ершов Б.Г. и др. 50 лет глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов – практические и научные результаты // Геоэкология. Инженерная геология, гидрогеология, геоэкология. – 2014. – № 1. – С. 86–90.
4. Савкин А.Е., Осташкина Е.Е., Сластенников Ю.Т. Разработка рецептуры цементного компаунда для отверждения кубового остатка АЭС нового поколения с реактором ВВЭР-1200 // Радиоактивные отходы. – 2023. – № 1 (22). – С. 17–22.
5. Щелочные вяжущие и мелкозернистые бетоны на их основе / под общ. ред. В.Д. Глуховского. – Ташкент: Узбекистан, 1980. – 483 с.

6. Козлов П.В., Логунов М.В., Ремизов М.Б. и др. Ретроспективный анализ разработки технологий переработки накопленных ВАО радиохимического производства ФГУП "ПО "Маяк" // Радиоактивные отходы. – 2023. – № 3 (24). – С. 14–33. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-3-14-33.
7. Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности. – НП-019-15. – Введ. 2015–25–06. – М.: Ростехнадзор России, 2015. – 22 с.
8. Понькин Е.И., Козлов П.В., Слюнчев О.М., Кирьянов К.В. Результаты численного моделирования разогрева отсека хранилища среднеактивных отходов в ходе заполнения цементным компаундом // Вопросы радиац. безопасности. – 2011. – № 4. – С. 11–17.
9. Козлов П.В., Слюнчев О.М., Старовойтов Н.П. Состав и свойства цементной матрицы для иммобилизации жидких радиоактивных отходов // Цемент и его применение. – 2010. – № 2. – С. 85–89.
10. Парутин К.А., Шайдуллин С.М., Ремизова В.А., Козлов П.В. Разработка состава цементной матрицы для иммобилизации щелочных высокоактивных отходов радиохимического производства // Цемент и его применение. – 2023. – № 2. – С. 65–71.
11. Дистанов У.Г., Михайлов А.С., Конюхова Т.П. Природные сорбенты СССР. – М.: Недра, 1990. – 208 с.
12. Климов Е.С., Бузаева М.В. Природные сорбенты и комплексоны в очистке сточных вод. – Ульяновск: УлГТУ, 2011. – 201 с.
13. Мдивнишвили О.М. Кристаллические основы регулирования свойств природных сорбентов. – Тбилиси: Мецниереба, 1983. – 268 с.
14. Макаров А.В. Процессы адсорбционной доочистки промышленных сточных вод от ионов никеля и цинка в адсорберах с псевдосжиженным слоем: дис. ... канд. техн. наук: 05.17.08. – Томск: НИТПУ, 2013. – 154 с.
15. Hadadi N., Kananpanah S., Abolghasemi H. Equilibrium and Thermodynamic Studies of Cesium Adsorption on Natural Vermiculite and Optimization of Operation Conditions // Iran J. Chem Chem Eng IJCCCE. – 2009. – No. 4. – P. 29–36.
16. Long H., Wu P., Yang L. et. al. Efficient removal of cesium from aqueous solution with vermiculite of enhanced adsorption property through surface modification by ethylamine // J. Colloid Interface Sci. – 2014. – V. 428 – P. 295–301.
17. Akalin H.A., Hiçsönmez Ü., Yilmaz H. Removal of cesium from aqueous solution by adsorption onto sivas-yildizeli (turkiye) vermiculite: equilibrium, kinetic and thermodynamic studies // J. of the Turkish Chemical Society Section A: Chemistry. – 2018. – V. 5. – No. 1. – P. 85–116.
18. Ахтямов Р.Я. Состояние сырьевой базы вермикулитовой промышленности России // Строительные материалы. – 2001. – № 11. – С. 6–8.
19. Ахтямов Р.Я. К вопросу промышленной классификации вермикулитовых руд // Огнеупоры и техническая керамика. – 2012. – № 1-2. – С. 73–77.
20. Ахтямов Я.А., Бобров Б.С., Геммерлинг Г.В., Эпельбаум М.Б. Обжиг вермикулита. – М.: Стройиздат, 1972. – 128 с.
21. Ахтямов Р.Я. Потанинский вермикулит – перспективное сырьё для производства высокотемпературных теплоизоляционных материалов // Огнеупоры и техническая керамика. – 2011. – № 4-5. – С. 92–96.
22. Ахтямов Р.Я. Применение вспученного вермикулита в технологии производства специальных видов сухих строительных смесей // Строительные материалы. – 2001. – № 4. – С. 4-5.
23. Слюнчев О.М., Козлов П.В., Ремизов М.Б. и др. Варианты переработки накопленных ВАО. Проблемы и перспективы // Тез. докл. XI Российской науч. конф. "Радиационная защита и радиационная безопасность в ядерных технологиях". Москва, 26–29 октября 2021 г.
24. Слюнчев О.М., Ремизова В.А., Бобров П.А., Козлов П.В. Разработка составов для цементирования жидких радиоактивных отходов в отсеках большого объема // Цемент и его применение. – 2022. – № 2. – С. 52–57.
25. Мельников А.А., Гордина Н.Е., Сеницын А.П. Модификация структуры вермикулита посредством механохимической активации // Химия и химическая технология: достижения и перспективы. – 2020. – С. 6.1–6.4.
26. Маркова Д.В., Бобров П.А., Козлов П.В. Цементирование высокоактивных отходов в шлако-щелочные матрицы / Вопросы атомной науки и техники. – 2023. – № 3. – С. 83–93.

УДК 666.11

© 2023

## ИССЛЕДОВАНИЕ МАКСИМАЛЬНОЙ РАСТВОРИМОСТИ ЦИРКОНИЯ В АЛЮМОБОРОСИЛИКАТНЫХ СТЕКЛАХ

*В.Е. Еремяшев<sup>1,2</sup>, Г.Г. Кориневская<sup>1,2</sup>, М.А. Рассомахин<sup>2</sup>, Д.Е. Живулин<sup>1</sup>,  
С.М. Шайдуллин<sup>3</sup>, П.В. Козлов<sup>3</sup>*

<sup>1</sup> *Россия, г. Челябинск, Южно-Уральский государственный университет*

<sup>2</sup> *Россия, г. Миасс, ФГБУН Южно-Уральский федеральный научный центр минералогии и геоэкологии УрО РАН (Институт минералогии УрО РАН)*

<sup>3</sup> *Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Одним из критичных компонентов высокоактивных отходов, поступающих в стекло и влияющих на его свойства, является цирконий. Источники его поступления могут быть разные: от частичного коррозионного разрушения оболочек ТВЭЛов в процессе переработки ОЯТ до растворения в расплаве стекла цирконийсодержащего огнеупорного материала стекловаренной печи. Также отмечается его присутствие в ОЯТ в качестве продукта деления. В представленной статье методами электронной микроскопии изучено растворение циркония в алюмоборосиликатных стеклах, разработанных в качестве матричного материала для иммобилизации высокоактивных радиоактивных отходов методом остекловывания. Исследовано распределение циркония между структурой стекла и кристаллическими фазами, сделан вывод об оптимальном соотношении компонентов, определяющем максимальное содержание циркония в стеклосодержащей части матричных материалов. Полученные результаты обеспечивают возможность корректировки параметров синтеза матричных стеклосодержащих боросиликатных материалов, применяемых при иммобилизации цирконийсодержащих высокоактивных радиоактивных отходов.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ, ОСТЕКЛОВЫВАНИЕ, МАТРИЧНЫЕ МАТЕРИАЛЫ, АЛЮМОБОРОСИЛИКАТНОЕ СТЕКЛО, ЦИРКОНИЙ, РАСТВОРИМОСТЬ

Одним из вариантов иммобилизации высокоактивных отходов является включение их в стекло [1-2]. Подобная технология промышленно эксплуатируется на ФГУП "ПО "Маяк" с 1987 года. Существуют регламентные ограничения по содержанию компонентов ВАО в стекле, которые обуславливают объем получающегося отвержденного продукта. Они обусловлены растворимостью компонентов ВАО в стекле (для обеспечения однородности образующегося компаунда), а также влиянием данных компонентов на свойства стекол как регулируемые нормативными требованиями [3], так и обусловленные технологическими особенностями процесса остекловывания (термовязкометрические свойства, коррозионная активность расплава и т. д.). Экономически целесообразно для предприятия захоронение

остеклованных ВАО в минимальном объеме, но с максимально возможным включением компонентов при сохранении всех основных качеств стеклянной матрицы.

Одним из критичных компонентов ВАО, поступающих в стекло и влияющих на его свойства, является цирконий [4-5]. Источники его поступления – частичное коррозионное разрушение оболочек ТВЭЛов в процессе переработки ОЯТ, растворение в расплаве стекла цирконийсодержащего огнеупорного материала стекловаренной печи [6], а также наличие его в ВАО в качестве продукта деления [7]. В процессе остекловывания данного вида отходов происходит формирование стеклосодержащего материала с распределением циркония между алюмоборосиликатной структурой стекла и кристаллическими фазами [8-9]. Присутствие

циркония в сетке стекла способствует увеличению химической и термической стойкости боросиликатных стёкол и подавляет кристаллизационные процессы, но увеличивает температуру стеклования и плотность стекла.

При встраивании циркония в структуру формирующегося стекла образуются комплексы  $[\text{ZrO}_6]^{2-}$ , координируемые ионами  $\text{Na}^+$  и соединённые с сеткой стекла через связи  $\text{Zr}-\text{O}-\text{Si}$  [10], [11]. Это предполагает наличие в составе стеклянной фритты достаточного избыточного количества ионов натрия для формирования комплексов  $[\text{ZrO}_6]^{2-}$ . В структуре алюмоборосиликатных стёкол наблюдается перераспределение ионов натрия за счёт их участия в компенсации избыточного заряда  $\text{Al}^{3+}$  в тетраэдрической координации [12]. Недостаточное количество ионов натрия для компенсации избыточного заряда ионов циркония является одной из причин значительной кристаллизации цирконийсодержащих фаз [13].

Несмотря на негативное влияние на встраивание циркония в структуру стекла, присутствие алюминия в матричных материалах является необходимым, так как повышает химическую и гидротермальную устойчивость и долговечность остеклованных ядерных отходов высокого уровня активности в условиях геологического захоронения [14]. Также наблюдается снижение интенсивности кристаллизационных процессов в процессе закалки расплава и при термическом воздействии [15].

При использовании в процессе остекловывания матричных материалов составов, аналогичных SON68 и ISG [16-17], возникает дополнительное ограничение по максимальному количеству циркония в перерабатываемых радиоактивных отходах. Данные материалы являются цирконийсодержащими, что уменьшает возможность добавления циркония в структуру стекла без кристаллизации на 2–4 масс. %.

Поэтому для увеличения растворимости циркония в матричных материалах выбранного состава с ВАО необходим поиск оптимального соотношения содержания циркония, алюминия и натрия в составе исходной стеклянной фритты. С этой целью были синтезированы и изучены несколько серий образцов стеклокерамических материалов системы  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Cs}(\text{Rb})_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{ZrO}_2$  ранее выбранного базового

состава [11] с разным соотношением натрия, алюминия и циркония. Исследовано распределение циркония между структурой стекла и кристаллическими фазами в зависимости от значения соотношения  $\text{ZrO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Na}_2\text{O}$ .

## МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

Методом быстрого охлаждения были синтезированы две серии образцов стеклокерамических материалов при двух разных соотношениях  $\text{Na}_2\text{O}/\text{Cs}(\text{Rb})_2\text{O}$  с разным содержанием  $\text{Al}_2\text{O}_3$  при постоянном содержании  $\text{ZrO}_2$  (табл. 1) и с разным содержанием  $\text{ZrO}_2$  при постоянном содержании  $\text{Al}_2\text{O}_3$  при двух разных соотношениях  $\text{Na}_2\text{O}/\text{Cs}(\text{Rb})_2\text{O}$  (табл. 2). Для первой серии содержание  $\text{Na}_2\text{O}$  и  $\text{Cs}(\text{Rb})_2\text{O}$  составляло 15 и 5 мол. % соответственно (образцы NCZ-5 и NRZ-5), для второй – одинаковое 10 мол. % (образцы NCZ-10 и NRZ-10). Обозначение образцов соответствует их составу и количеству добавленных компонентов.

Для синтеза были подготовлены исходные смеси из реактивов  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Cs}_2\text{CO}_3$  и  $\text{Rb}_2\text{CO}_3$  квалификации "ос. ч." и  $\text{CaO}$ ,  $\text{BaO}$ ,  $\text{SrO}$  и  $\text{ZrO}_2$  квалификации "х. ч." с рассчитанным сочетанием компонентов. Высокотемпературный синтез образцов был проведён плавлением смеси и быстрым охлаждением (закалкой) полученного расплава по методике, описанной ранее [18–20]. После тщательного перемешивания все смеси помещались в платиновые тигли и нагревались в электропечи до 1200–1250 °С. После выдержки в течение двух часов при максимальной температуре для гомогенизации полученные расплавы выливались на металлическую поверхность и охлаждались до комнатной температуры.

Изучение однородности образцов, определение содержания и распределения химических элементов в объёме стекла было выполнено методом рентгеноспектрального анализа (РСА) на сканирующем электронном микроскопе Tescan Vega3, оснащённом энергодисперсионным рентгенофлюоресцентным спектрометром Oxford Instrument X-act. Точность определения среднего значения содержания химических элементов составила  $\pm 0,5$  масс. %. Средние значения содержания компонентов для стекла в каждом образце, рассчитанные на

Таблица 1

Состав стёкол. Разное количество  $\text{Al}_2\text{O}_3$  при 10 %  $\text{ZrO}_2$

Натриевые (5 мол. % $\text{Al}_2\text{O}_3$ 10 % $\text{ZrO}_2$ )							
Реактивы		$\text{Na}_2\text{O}$	–	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{SiO}_2$	$\text{B}_2\text{O}_3$	$\text{ZrO}_2$
NCZ-0_10Z5A	масс. %	17,97	–	8,17	42,74	14,53	16,60
	мол. %+Zr	20,35	–	5,62	49,93	14,64	9,45
Натриево-цезиевые (0 мол. % $\text{Al}_2\text{O}_3$ 10 % $\text{ZrO}_2$ )							
Реактивы		$\text{Na}_2\text{O}$	$\text{Cs}_2\text{O}$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{SiO}_2$	$\text{B}_2\text{O}_3$	$\text{ZrO}_2$
NCZ-5_10Z0A	масс. %	14,61	8,52	0,00	39,56	18,51	18,81
	мол. %	17,55	2,25	0,00	49,03	19,80	11,37
NCZ-10_10Z0A	масс. %	11,05	17,07	0,00	37,41	19,38	15,09
	мол. %	14,13	4,80	0,00	49,32	22,06	9,70
Натриево-цезиевые (5 мол. % $\text{Al}_2\text{O}_3$ 10 мол. % $\text{ZrO}_2$ )							
NCZ-5_10Z5A	масс. %	10,22	5,18	7,37	37,69	24,17	15,37
	мол. %	12,17	1,36	5,34	46,30	25,63	9,21
NCZ-10_10Z5A	масс. %	8,52	21,34	6,58	31,79	19,46	12,31
	мол. %	11,59	6,38	5,44	44,60	23,56	8,42
Натриево-цезиевые (10 мол. % $\text{Al}_2\text{O}_3$ 10 мол. % $\text{ZrO}_2$ )							
NCZ-5_10Z10A	масс. %	13,41	13,28	14,56	36,32	14,58	7,86
	мол. %	16,85	3,67	11,12	47,08	16,31	4,97
NCZ-10_10Z10A	масс. %	13,79	16,07	12,01	29,39	19,10	9,63
	мол. %	17,96	4,60	9,50	39,48	22,15	6,31
Натриево-рубидиевые (0 мол. % $\text{Al}_2\text{O}_3$ 10 % $\text{ZrO}_2$ )							
Реактивы		$\text{Na}_2\text{O}$	$\text{Rb}_2\text{O}$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{SiO}_2$	$\text{B}_2\text{O}_3$	$\text{ZrO}_2$
NRZ-5_10Z0A	масс. %	13,48	8,92	0,08	34,48	23,39	19,66
	мол. %+Zr	16,28	3,57	0,06	42,98	25,16	11,95
NRZ-10_10Z0A	масс. %	10,26	13,39	0,00	38,45	22,94	14,97
	мол. %+Zr	12,46	5,39	0,00	48,19	24,81	9,15
Натриево-рубидиевые (5 мол.% $\text{Al}_2\text{O}_3$ 10 мол. % $\text{ZrO}_2$ )							
NRZ-5_10Z5A	масс. %	14,34	9,18	6,87	35,41	18,63	15,43
	мол. %+Zr	17,40	3,69	5,07	44,31	20,12	9,42
NRZ-10_10Z5A	масс. %	11,36	15,87	6,80	30,12	22,38	13,46
	мол. %+Zr	14,46	6,70	5,27	39,57	25,37	8,62
Натриево-рубидиевые (10 мол. % $\text{Al}_2\text{O}_3$ 10 мол. % $\text{ZrO}_2$ )							
NRZ-5_10Z10A	масс. %	13,07	9,03	16,68	40,46	13,64	7,16
	мол. %+Zr	15,62	3,58	12,11	49,88	14,51	4,30
NRZ-10_10Z10A	масс. %	10,30	19,73	13,92	34,83	12,36	8,86
	мол. %+Zr	13,43	8,53	11,03	46,85	14,35	5,81



Таблица 2

Состав стёкол. Разное количество  $ZrO_2$  при 5 мол. %  $Al_2O_3$

Натриево-цезиевые (5 мол. % $Al_2O_3$ 5 % $ZrO_2$ )							
Реактивы		$Na_2O$	$Cs_2O$	$Al_2O_3$	$SiO_2$	$B_2O_3$	$ZrO_2$
NCZ-5_5Z5A	масс. %	14,96	6,43	9,03	45,91	14,87	8,79
	мол. %	17,22	1,63	6,32	54,51	15,24	5,09
NCZ-10_5Z5A	масс. %	11,17	18,83	7,67	40,33	13,71	8,30
	мол. %	14,33	5,31	5,98	53,37	15,65	5,36
Натриево-цезиевые (5 мол. % $Al_2O_3$ 15 % $ZrO_2$ )							
NCZ-5_15Z5A	масс. %	12,38	6,40	7,47	38,47	21,84	13,45
	мол. %	14,70	1,67	5,39	47,12	23,08	8,03
NCZ-10_15Z5A	масс. %	11,76	17,52	6,16	32,08	19,36	13,12
	мол. %	15,42	5,05	4,91	43,37	22,60	8,65
Натриево-рубидиевые (5 мол. % $Al_2O_3$ 5 % $ZrO_2$ )							
Реактивы		$Na_2O$	$Rb_2O$	$Al_2O_3$	$SiO_2$	$B_2O_3$	$ZrO_2$
NRZ-5_5Z5A	масс. %	14,69	8,66	8,48	42,85	15,29	10,03
	мол. %	17,16	3,36	6,03	51,65	15,91	5,90
NRZ-10_5Z5A	масс. %	11,23	14,55	7,79	40,52	15,22	10,70
	мол. %	13,78	5,92	5,81	51,27	16,62	6,60
Натриево-рубидиевые (5 мол. % $Al_2O_3$ 15 % $ZrO_2$ )							
NRZ-5_15Z5A	масс. %	11,91	6,99	7,69	37,69	21,60	13,79
	мол. %	14,19	2,76	5,57	46,31	22,90	8,26
NRZ-10_15Z5A	масс. %	11,87	9,52	6,86	36,29	20,48	14,53
	мол. %	14,45	3,84	5,07	45,55	22,19	8,90

основе данных трёх измерений, приведены в табл. 1 и 2.

Карты распределения характеристического излучения, отражающие распределение химических элементов по полированной поверхности образцов, были получены наложением пяти последовательных кадров со временем набора 262 с.

Измерение плотности отдельных выбранных кусочков каждого синтезированного образца было выполнено на гелиевом пикнометре АссурПус 1340 (АККУПИК 1340, Micromeritics (США)).

#### РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

По данным определения химического состава содержание натрия, алюминия, циркония

и кремния на выбранных для исследования участках образцов соответствует запланированному составу. Несколько заниженное содержание цезия, рубидия и бора является следствием частичного испарения компонентов при синтезе, сложности количественного определения методами электронной микроскопии и влияния кристаллизационных процессов. Так, значительно более низкое содержание цезия и рубидия в стекле образцов NCZ-5\_10Z10A, NCZ-10\_10Z10A и NRZ-10\_10Z5A связано со значительной кристаллизацией поллуцита и рубидиевого цирконосиликата. Карты распределения химических элементов на поверхности участков образцов без кристаллов подтверждают равномерное распределение всех химических элементов в объёме стекла.

Изображения полированной поверхности образцов, полученные в обратно рассеянных



электронах с помощью сканирующей электронной микроскопии, указывают на то, что все образцы с низким содержанием цезия и рубидия (серии NCZ-5 и NRZ-5) представлены более однородным материалом, сложенным стеклом и кристаллами бадделеита ( $ZrO_2$ ). Отдельные скопления кристаллов бадделеита небольшого размера неравномерно распределены в объёме образцов и сосредоточены в основном на участках, соответствующих расплаву из донной части тиглей (рис. 1). Их количество в составе образцов постепенно нарастает при увеличении содержания  $ZrO_2$  и  $Al_2O_3$ .

В образцах с более высоким содержанием цезия и рубидия (серии NCZ-10 и NRZ-10) кроме стекла наблюдается значительное присутствие кристаллов бадделеита на всех участках поверхности (рис. 2). Также фиксируется присутствие кристаллов поллуцита (натриево-цезиевые образцы) и рубидиевого цирконосиликата (натриево-рубидиевые образцы с высоким содержанием  $ZrO_2$ ).

В образцах с более высоким содержанием  $Al_2O_3$  кристаллы бадделеита имеют дендритную форму, что указывает на большую скорость

их роста из-за более благоприятных условий роста (рис. 3а).

При избыточном содержании  $Na_2O$  (до 20 мол. %) и отсутствии алюминия в составе стекла растворение циркония с образованием структурных единиц стекла составило 14–20 мол. %  $ZrO_2$  (табл. 1), что значительно превышает максимально возможное содержание циркония в ВАО. При низком содержании алюминия и циркония в исходной смеси (0–5 мол. %  $Al_2O_3$  и 0–5 мол. %  $ZrO_2$ ) концентрация циркония в стекле также примерно соответствует максимальному возможному значению.

По мере роста содержания  $ZrO_2$  в исходной смеси концентрация циркония в структуре стекла постепенно увеличивается и в зависимости от заданного содержания алюминия достигает определённого максимального значения (рис. 4). В образцах исследованных серий при 5 мол. %  $Al_2O_3$  в составе стекла наблюдается порядка 8–9 мол. %  $ZrO_2$ , а весь избыточный цирконий идёт на образование кристаллов бадделеита, неравномерно распределённых в стекле. При 10 мол. %  $Al_2O_3$  происходит снижение концентрации циркония в стекле

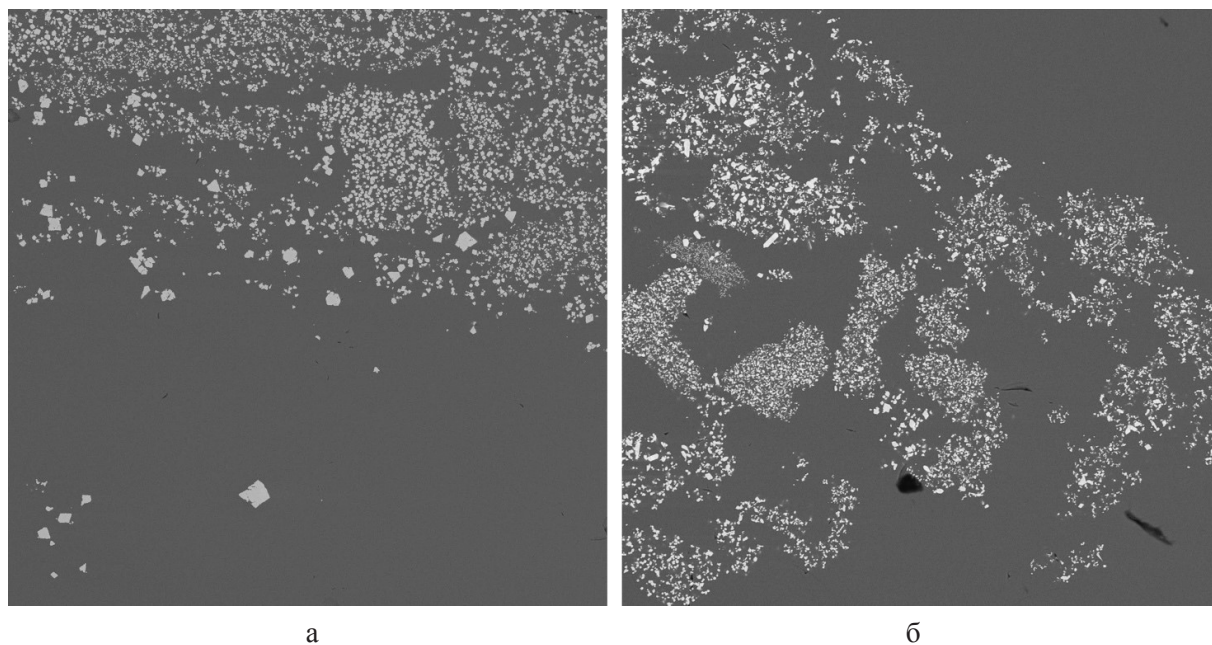


Рис. 1. Участки поверхности образцов NCZ-5\_10Zr5Al (а) и NRZ-5\_10Zr5Al (б) со значительным присутствием кристаллов бадделеита

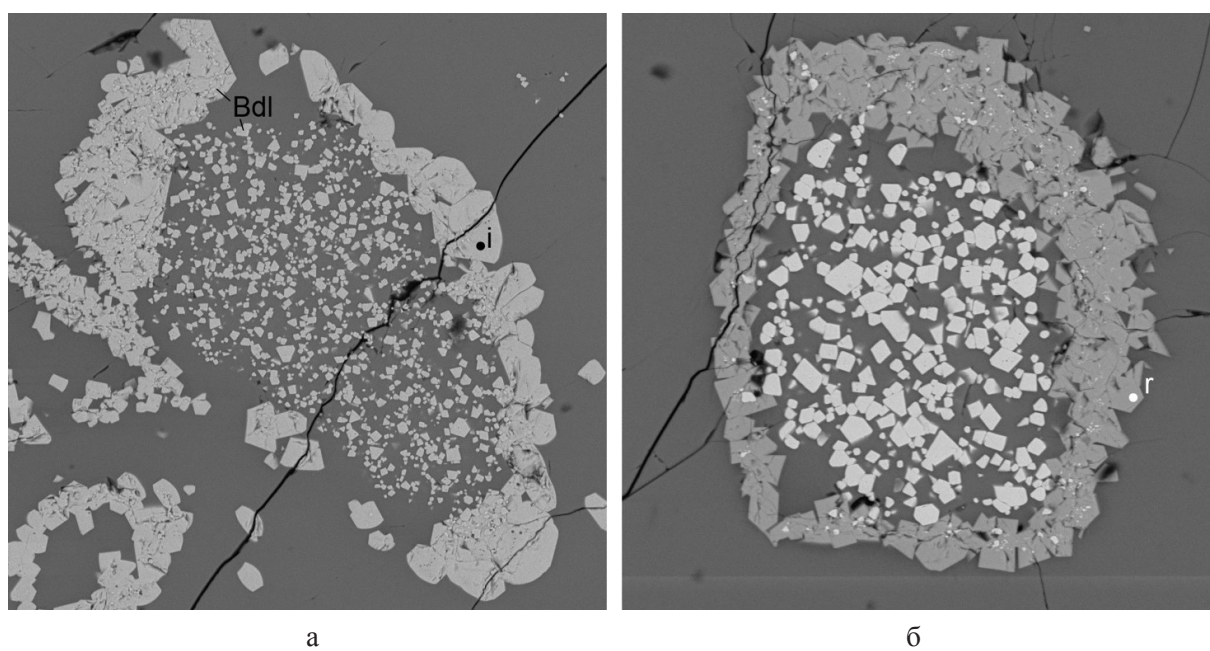


Рис. 2. Участки поверхности натриево-цезиевых и натриево-рубидиевых образцов с высоким содержанием  $ZrO_2$ : а – NCZ-10\_15Zr0Al, б – NRZ-10\_15Zr0Al

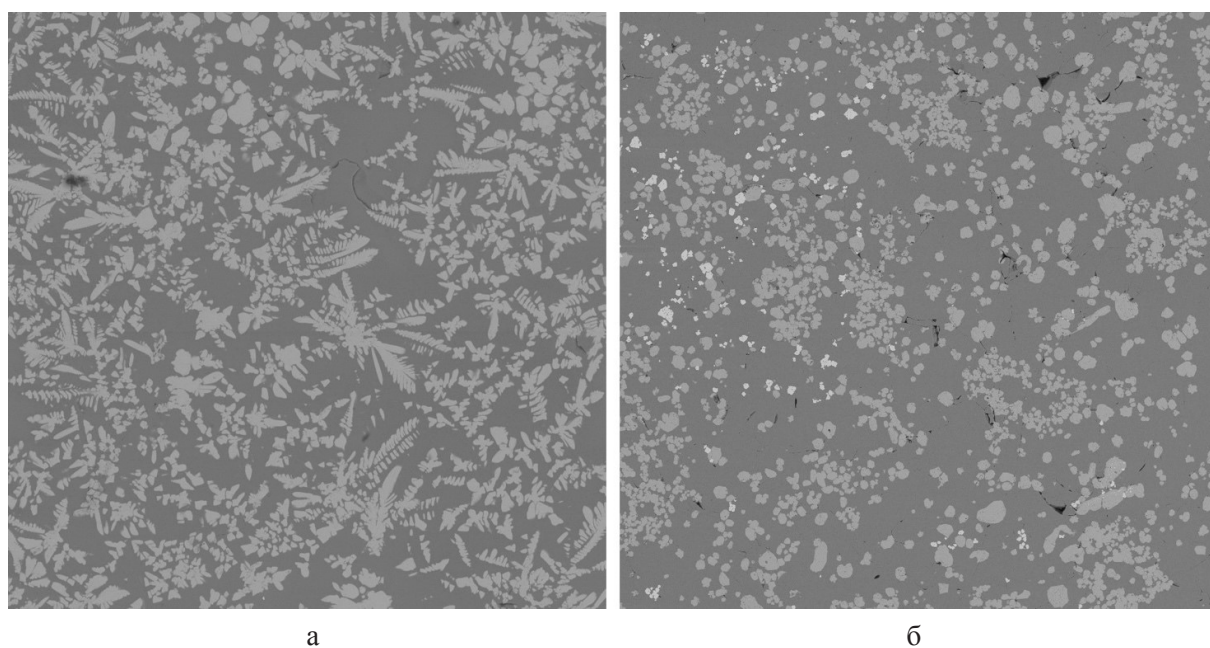


Рис. 3. Разный облик кристаллов бадделеита в натриево-рубидиевых образцах с разным соотношением циркония и алюминия: а – NCZ-10\_5Zr\_10Al, б – NCZ-10\_10Zr\_5Al

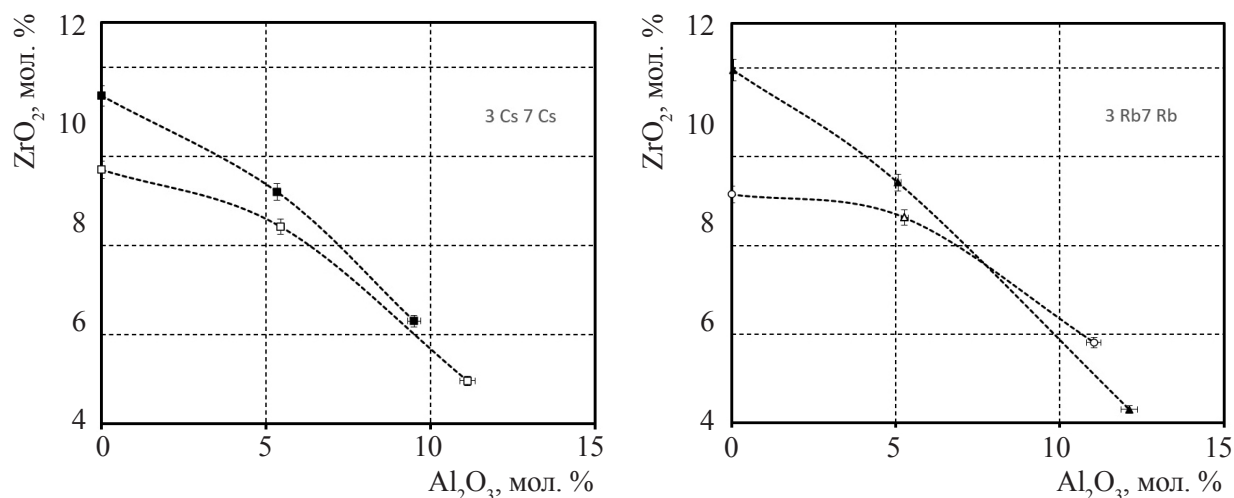


Рис. 4. Зависимость содержания циркония в стекле от содержания алюминия в образцах с разным содержанием цезия и рубидия (образцы 3 – NRZ-5-10Zr0Al, NRZ-5\_10Zr5Al, NRZ-3-10Zr10Al, NCZ-5\_10Zr0Al, NCZ-5-10Zr5Al, NCZ-5-10Zr 10Al)

до 4–6 мол. %  $ZrO_2$ , которое сопровождается увеличением доли кристаллической фазы (бадделеита).

При фиксированном содержании  $Al_2O_3$  и  $ZrO_2$  доля циркония в составе структурных единиц стекла зависит от выбранного соотношения  $Na_2O/Cs(Rb)_2O$  и имеет более высокое значение при более высоком значении этого соотношения. В натриево-цезиевых образцах концентрация  $ZrO_2$  в стекле всегда несколько ниже, чем в аналогичных натриево-рубидиевых образцах (рис. 5).

Средние значения плотности синтезированных образцов лежат в пределах от 2,5 до 3,1 г/см<sup>3</sup>. Как видно из рис. 6, прослеживается тенденция к увеличению плотности стекла при росте содержания циркония и замещении в составе образцов  $Na_2O$  оксидами  $Cs_2O$  и  $Rb_2O$ . Наименьшей плотностью обладают образцы, не содержащие цирконий, и значение плотности последовательно возрастает при росте содержания  $ZrO_2$ .

Стекла с низким содержанием оксидов  $Cs_2O$  и  $Rb_2O$  по сравнению с аналогичными образцами с более высоким содержанием этих оксидов имеют плотность ниже на 0,5–1,0 г/см<sup>3</sup>. Это различие определяется не только разной массой катионов-модификаторов, но разным их ионным радиусом. При координационном

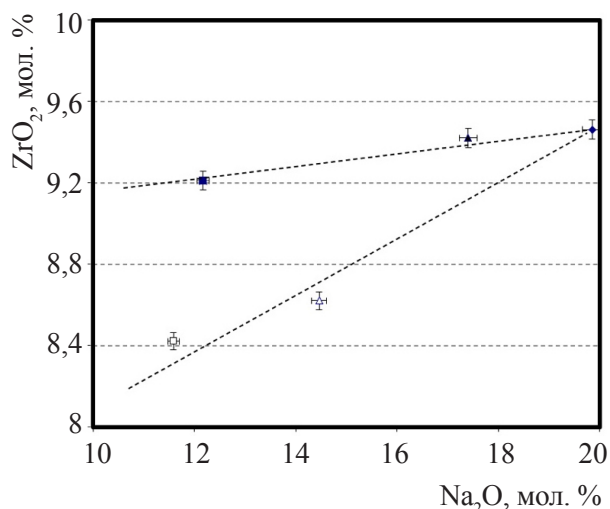


Рис. 5. Зависимость содержания циркония в стекле от содержания натрия  $Na_2O$  в образцах с разным содержанием цезия и рубидия при фиксированном содержании циркония и алюминия (образцы NZ-0\_10Zr5Al, NCZ-5\_10Zr5Al, NCZ-10\_10Zr5Al, NRZ-5\_10Zr5Al, NRZ-10\_10Zr5Al)

числе, равном 6, ионный радиус  $Na^+$  (0,116 нм) заметно меньше, чем для  $Rb^+$  (0,166 нм) и  $Cs^+$  (0,181 нм) [21].



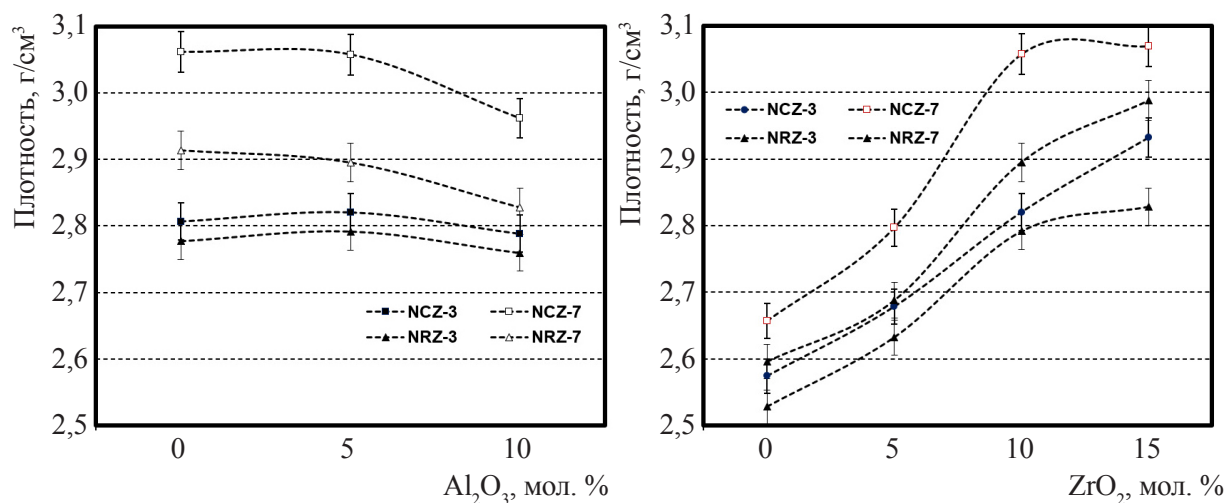


Рис. 6. Зависимость плотности полученных образцов от содержания алюминия и циркония в составе исходной смеси образцов

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для образцов, полученных охлаждением расплавов с низким содержанием  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (0-5 мол. %) и низким содержанием циркония (5-10 мол. %  $\text{ZrO}_2$ ), зафиксировано формирование однородного вещества со структурой стекла. Весь внесённый цирконий входит в состав структурных единиц стекла, присутствие цирконийсодержащих кристаллических фаз незначительно. При более высоком содержании  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (5–10 мол. %) независимо от содержания  $\text{ZrO}_2$  происходит формирование более неоднородного материала со значительным присутствием кристаллов.

Содержание  $\text{ZrO}_2$  в стекле демонстрирует ярко выраженную зависимость от общего содержания  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$  и  $\text{ZrO}_2$  в составе исходной смеси. При фиксированном содержании  $\text{Al}_2\text{O}_3$  и  $\text{ZrO}_2$  доля циркония в составе структурных единиц стекла зависит от выбранного соотношения  $\text{Na}_2\text{O}/\text{Cs}_2\text{O}$  или  $\text{Na}_2\text{O}/\text{Rb}_2\text{O}$ . При избыточном содержании  $\text{Na}_2\text{O}$  и низком содержании цезия, рубидия и алюминия в составе исходной смеси растворение циркония в структуре стекла достигает максимального значения. Оптимальное соотношение  $\text{ZrO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Na}_2\text{O}$ , определяющее максимальное содержание циркония в структуре стекольной части матричных материалов

изученной системы, должно примерно соответствовать соотношению  $x/5/(x+5)$ , где  $x$  – мольная доля  $\text{ZrO}_2$ .

Различие в плотности между образцами хорошо объясняется отличием в химическом составе. Наименьшей плотностью обладают образцы, не содержащие цирконий, её значение последовательно возрастает при росте содержания циркония, цезия и рубидия.

Полученные результаты исследований имеют практическое значение и будут использованы при разработке регламентных ограничений для установок отверждения цирконийсодержащих ВАО в боросиликатное стекло.

**Синтез, подготовка образцов, исследование выбранными методами и обработка результатов выполнены за счёт гранта Российского научного фонда № 22-23-20024, <https://rscf.ru/project/22-23-20024/>.**

### ЛИТЕРАТУРА

1. McCloy J.S., Goel A. Glass-ceramics for nuclear-waste immobilization // MRS Bull. – 2017. – V. 42. – No. 3. – P. 233–240.
2. Ojovan M.I., Lee W.E., Kalmykov S.N. An introduction to nuclear waste immobilisation. – 3<sup>rd</sup> ed. – Amsterdam: Elsevier, 2019. – 497 p.

3. Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности: НП-019-15. – Введ. 2015–25–06. – М.: Ростехнадзор России, 2015. – 22 с.
4. Ojovan M.I., Steinmetz H.J. Approaches to disposal of nuclear waste // *Energies*. – 2022. – No. 15. – P. 7804.
5. Singh B.K., Hafeez M.A., Kim H. et al. Inorganic waste forms for efficient immobilization of radionuclides // *ACS ES&T Engineering*. – 2021. – No. 1 (8). – P. 1149–1170.
6. Шайдуллин С.М., Козлов П.В., Ремизов М.Б. и др. Коррозионные испытания хромсодержащих и бадделеитокорундового огнеупорных материалов отечественного и зарубежного производства в расплавах боросиликатных стёкол // *Вопросы радиац. безопасности*. – 2022. – № 4. – С. 17–29.
7. Козлов П.В., Беланова Е.А., Ремизов М.Б. и др. Изучение свойств алюмофосфатных стёкол, содержащих цирконий в значительных концентрациях / V Международная конференция-школа по химической технологии ХТ'16. Сборник тезисов докладов сателлитной конференции XX Менделеевского съезда по общей и прикладной химии: в 3 томах. Том 2. – Волгоград: Изд-во Волгоградского государственного технического университета, 2016. – С. 394–396.
8. Quintas A., Caurant D., Majerus O. et al. ZrO<sub>2</sub> addition in soda-lime aluminoborosilicate glasses containing rare earths: Impact on the network structure // *J. Alloys Compd.* – 2017. – No. 714. – P. 47–62.
9. Vienna J.D., Collins E.D., Crum J.V. et al. Closed fuel cycle waste treatment strategy. Idaho Falls, ID: Idaho National Laboratory; 2015, 2015–02–01. Contract No.: INL/EXT-15-34504, PNNL-24114.
10. Guo Y., Liu C., Wang J. et al. Effect of ZrO<sub>2</sub> crystallization on ion exchange properties in aluminosilicate glass // *J. of the European Ceramic Society*. – May 2020. – V. 40, Issue 5. – P. 2179–2184.
11. Eremyashev V.E., Rassomakhin M.A., Korinevskaya G.G. et al. Synthesis and study of zirconium-containing sodium-caesium aluminoborosilicate matrix materials // *J. of Non-Crystalline Solids*. – 2023. – V. 617. – P. 122497. – ISSN 0022-3093. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2023.122497>
12. Angeli F., Charpentier T., Ligny D., Cailleteau C. Boron speciation in soda-lime borosilicate glasses containing zirconium // *J. Am. Ceram. Soc.* – 2010. – V. 93 (9). – P. 2693–2704. – doi:10.1111/j.1551-2916.2010.03771.x
13. Connelly A.J. et al. The structural role of Zr within alkali borosilicate glasses for nuclear waste immobilization // *J. Non Cryst. Solids*. – 2011a. – V. 357. – P. 1647–1656.
14. Damodaran K., Gin S., Narayanasamy S. et al. On the effect of Al on aluminoborosilicate glass chemical durability // *Npj Materials Degradation*. – 2023. – No. 7. – P. 46. <https://doi.org/10.1038/s41529-023-00364-3>
15. Han J., Lai Y., Xiang Y. et al. Structure and crystallization behavior of Al containing glasses in the CaO–B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–SiO<sub>2</sub> system // *RSC Advances*. – 2017. – V. 7(24). – P. 14709–14715. – doi:10.1039/c7ra01427a
16. Gin S., Abdelouas A., Criscenti L.J. et al. An international initiative on long-term behavior of high-level nuclear waste glass // *Materials Today*. – 2013. – V. 16(6). – P. 243–248. – doi:10.1016/j.mattod.2013.06.008
17. Kaspar T.C., Ryan J.V., Pantano C.G. et al. Physical and optical properties of the International Simple Glass // *Npj Materials Degradation*. – 2019. – No. 3(1). – doi:10.1038/s41529-019-0069-2
18. Еремышев В.Е., Осипов А.А., Осипова Л.М. Структура боросиликатных стёкол при замещении катиона натрия катионами щелочноземельных металлов // *Стекло и керамика*. – 2011. – № 7. – С. 3–6. [Eremyashev V. E., Osipov A. A., Osipova L. M. Borosilicate glass structure with rare-earth-metal cations substituted for sodium cations // *Glass and Ceram.* – 2011. – V. 68. – No. 7–8. – P. 205–208.] – doi 10.1007/s10717-011-9353-5
19. Eremyashev V.E., Korinevskaja G.G., Bukalov S.S. Titanium in the structure of alkali borosilicate glasses // *Glass and Ceram.* – 2016. – V. 72. – No. 11. – P. 405–408.
20. Eremyashev V.E., Zherebtsov D.A., Osipova L.M. et al. Effect of calcium, barium, and strontium on the thermal properties of borosilicate glasses // *Glass and Ceram.* – 2018. – V. 74. – P. 345–348. <https://doi.org/10.1007/s10717-018-9991-y>
21. Shannon R.D. Revised effective ionic radii and systematic studies of interatomic distances in halides and chalcogenides // *Acta Cryst.* – 1976. – V. A32. – P. 751–767.

УДК 66.061.352

© 2023

## РЕЭКСТРАКЦИЯ УРАНА АЦЕТАТОМ И ФОРМИАТОМ АММОНИЯ

*А.С. Корнилов<sup>1</sup>, С.С. Погляд<sup>1,2</sup>, Н.О. Позигун<sup>1</sup>, В.А. Болдаков<sup>1</sup>,  
О.С. Дмитриева<sup>1</sup>, В.А. Москальцова<sup>2</sup>*

*<sup>1</sup>Россия, г. Димитровград, АО "ГНЦ НИИАР"*

*<sup>2</sup>Россия, г. Димитровград, ДИТИ НИЯУ МИФИ*

Исследованы реэкстрагенты для извлечения урана из 30%-ного раствора ТБФ в декане после стадии экстракции с насыщением 110–116 г/л. Изучены растворимости уранилнитрата в растворах ацетата и формиата аммония, коэффициенты распределения урана в зависимости от концентраций ацетата и формиата аммония. Проведены сравнительные испытания эффективности предложенных реэкстрагентов. По результатам исследований сделаны выводы о применимости ацетата и формиата аммония в качестве реэкстрагентов урана.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: ЭКСТРАКЦИЯ, РЕЭКСТРАКЦИЯ, АЦЕТАТ АММОНИЯ, ФОРМИАТ АММОНИЯ, ТРИБУТИЛФОСФАТ

В настоящее время экстракция является одним из основных процессов химической технологии урана. Наибольшее распространение в технологии урана и переработки ОЯТ получил PUREX-процесс, заключающийся в экстракции урана (VI) и плутония (VI) раствором ТБФ в органическом растворителе из 4 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Уран легко образует экстрагируемые комплексы и переходит в органическую фазу, а продукты деления остаются в водном растворе [1].

В промышленных схемах экстракционного аффинажа урана с использованием в качестве экстрагента трибутилфосфата (ТБФ) реэкстракцию урана осуществляют 0,05–0,1 моль/л  $\text{HNO}_3$  [2]. На сегодняшний день также существуют способы реэкстракции урана из ТБФ, основанные на комплексообразовании урана с реэкстрагирующими растворами: реэкстракция карбонатом аммония, карбамидом, щавелевой, уксусной и муравьиной кислотами [3, 4]. Для полного извлечения урана из органической фазы необходимо 5–7 ступеней реэкстракции и, соответственно, большой поток реэкстрагирующего раствора, а также повышенные температуры 60–70 °С, что приводит к значительному накоплению (наряду с радиационным воздействием) в органической фазе продуктов

разложения трибутилфосфата и разбавителя, в результате чего снижаются эксплуатационные характеристики экстрагента. Наличие значительного объема водного раствора, выходящего из блока реэкстракции урана, требует при дальнейшей его переработке и утилизации ёмкостного оборудования относительно больших габаритов, повышенного расхода реагентов и ведёт к увеличению объёма ЖРО и стоимости обращения с ними [5].

Состав реэкстрагирующего раствора и условия проведения реэкстракции имеют большое влияние на эффективность экстракционной очистки и процессы последующего концентрирования и выделения урана. Реэкстрагент должен обеспечивать достаточно полный переход целевого компонента в водную фазу и по возможности соответствовать следующим требованиям:

- низкий коэффициент распределения урана;
- низкая стоимость реэкстрагента;
- совместимость состава реэкстрагента с последующими процессами концентрирования и выделения урана.

Целью настоящей работы была разработка удобного способа реэкстракции урана, который позволял бы количественно извлекать уран из



органической фазы за наименьшее количество операций и легко переходить к последующим процессам концентрирования и выделения урана.

По мнению авторов, наиболее удобными и эффективными реэкстрагентами являются ацетат и формиат аммония. Во-первых, ацетат- и формиат-ионы образуют с уранил-ионом достаточно прочные комплексы. Во-вторых, растворимость урана в ацетатных и формиатных растворах высока. В-третьих, ацетат и формиат аммония являются удобными исходными средами для осаждения уранилтрикарбоната аммония – осадка, обладающего наилучшими технологическими свойствами.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для определения растворимости нитрата уранила в растворах формиата и ацетата аммония приготовили серию растворов формиата и ацетата аммония с концентрацией 0,1–5 моль/л. К растворам ацетата и формиата аммония добавляли сухой порошок уранилнитрата до получения насыщенного раствора. Насыщенный раствор выдерживали над слоем осадка 7 сут при периодическом перемешивании. Перед определением содержания урана в полученном растворе, осадок от раствора отделяли центрифугированием.

Для экстракции использовали 30%-ный раствор ТБФ в декане и раствор  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$  в 4 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Экстракцию проводили в делительной воронке при комнатной температуре. Объёмное соотношение органической и водной фазы при экстракции (О : В) было равно 1 : 1. Насыщенная органическая фаза содержала 110–116 г/л урана. В качестве реэкстрагента в работе были использованы растворы формиата и ацетата аммония. Объёмное соотношение органической и водной фазы при реэкстракции (О : В) было равно 1 : 1.

Концентрацию урана в водной фазе определяли спектрофотометрическим методом, основанном на использовании органического окрашенного реагента Арсеназо III, с помощью спектрофотометра СФ-56. Содержание урана в органической фазе рассчитывали по массовому балансу, pH растворов определяли с помощью pH-метра 150-М.

### РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

#### *Определение растворимости нитрата уранила в растворах формиата и ацетата аммония*

Для технологии большое значение имеет концентрация урана в реэкстракте, которая определяется растворимостью нитрата уранила в соответствующих растворах. На рис. 1 показаны зависимости растворимости уранилнитрата в растворах формиата и ацетата аммония от их концентрации.

Как видно, растворимость урана в формиатных растворах в интервале концентраций формиата аммония 2–3 моль/л составляет не менее 180–250 г/л, в ацетатных растворах – существенно ниже и не превышает 70–100 г/л.

#### *Определение коэффициентов распределения урана. Зависимость коэффициента распределения от pH и концентраций ацетата и формиата аммония*

Устойчивость комплексов урана и, соответственно, эффективность реэкстракции зависит от pH раствора. В свою очередь, на значение pH влияет присутствие урана, который гидролизуетеся и понижает pH раствора. Азотная кислота, содержащаяся в экстракте, также переходит в реэкстракт и, соответственно, понижает его pH. Следовательно, концентрация формиата и ацетата аммония должна обеспечивать нейтрализа-

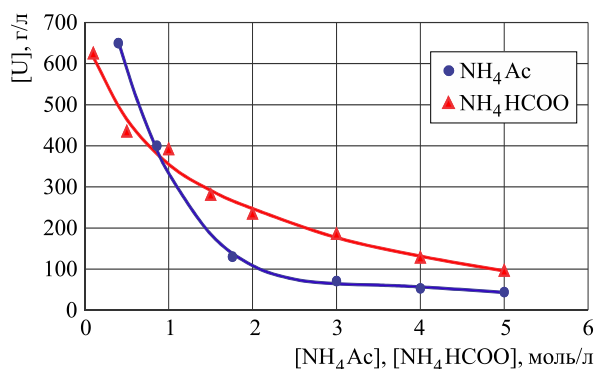


Рис. 1. Зависимость растворимости уранилнитрата в формиате и ацетате аммония от их концентраций

цию указанной кислотности и комплексообразование урана. На рис. 2 показана зависимость конечного pH реэкстрагирующих растворов формиата и ацетата аммония от их концентраций, а на рис. 3 и 4 – зависимости коэффициента распределения урана (D) от конечного pH реэкстрагирующих растворов формиата и ацетата аммония и их концентраций.

Как видно из рис. 2–4, коэффициент распределения урана и конечный pH реэкстракта зависят от соотношения концентраций урана и реэкстрагирующих растворов. Очевидно, что реэкстракцию выгоднее проводить при наименьших коэффициентах распределения. На рис. 2 это соответствует области концентраций формиата и ацетата аммония более 2 моль/л и соответственно pH более 4, т. е. в условиях образования формиатных и ацетатных комплексов урана. Что касается верхнего предела pH, то он определяется устойчивостью ацетатных и формиатных растворов урана. Значения pH 2 моль/л растворов ацетата и формиата аммония равны соответственно 7,2 и 6,7. В этих условиях ацетатные и формиатные растворы урана устойчивы. Отметим, что при нейтрализации кислого экстракта урана конечный pH соответствует буферным областям формиата и ацетата аммония и не превышает 4–6.

Таким образом, исходя из экспериментальных данных, приведённых на рис. 1–4, можно сделать следующие выводы:

1. Для реэкстракции необходимо использовать растворы ацетата и формиата аммония с концентрацией 2–3 моль/л. В этой области коэффициенты распределения минимальны и, соответственно, реэкстракция наиболее эффективна.

2. С точки зрения получения наибольшей концентрации урана в реэкстракте 180–250 г/л реэкстрагировать лучше 2–3 моль/л растворами формиата аммония. При использовании ацетата аммония реэкстракт будет содержать не более 70–100 г/л урана.

Наилучшие условия для реэкстракции наблюдаются при конечном pH формиата аммония 4–6. При исходном содержании урана в органической фазе 116 г/л и равных объёмах водной и органической фаз за один цикл реэкстракции в водную фазу переходит более 99 % урана. Остаток урана можно легко из-

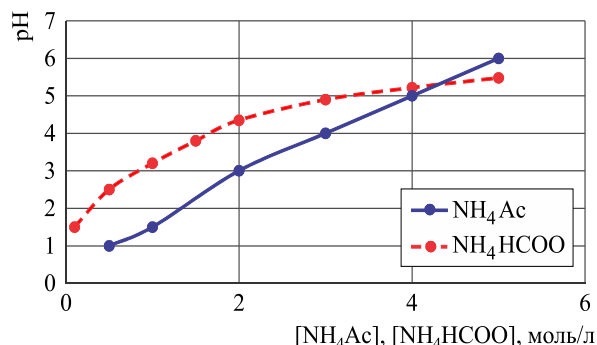


Рис. 2. Реэкстракция урана из 30%-ного раствора ТБФ в декане растворами формиата и ацетата аммония. Зависимость конечного значения pH реэкстракта от концентраций формиата и ацетата аммония

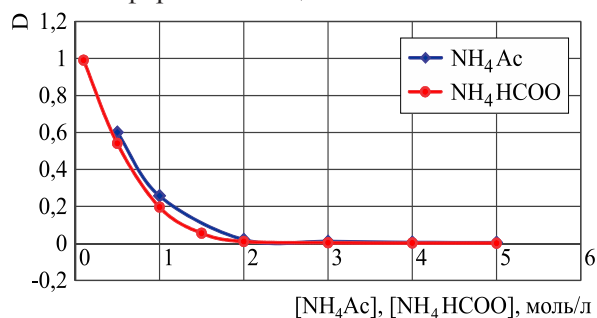


Рис. 3. Реэкстракция урана из 30%-ного раствора ТБФ в декане растворами формиата и ацетата аммония. Зависимость коэффициента распределения от концентраций формиата и ацетата аммония

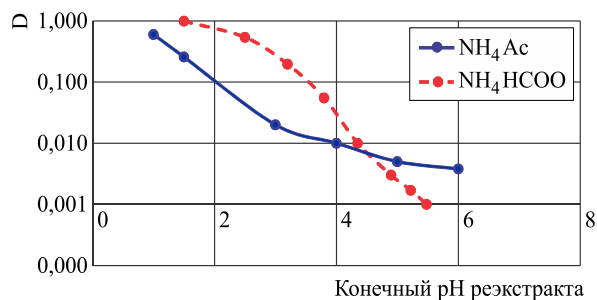


Рис. 4. Реэкстракция урана из 30%-ного раствора ТБФ в декане растворами формиата и ацетата аммония. Зависимость коэффициента распределения от конечного значения pH реэкстракта. Исходная концентрация урана в органической фазе 116 г/л

влекать небольшим объёмом реэкстрагента при  $V_{\text{вод}} : V_{\text{орг}} = 0,1$ .

### **Сравнительная реэкстракция урана ацетатом и формиатом аммония**

В таблице приведены результаты реэкстракции урана из насыщенного ураном 30%-ного раствора ТБФ в декане 2 моль/л растворами формиата и ацетата аммония при исходной концентрации урана в органической фазе 116 г/л.

Как видно из данных таблицы, при использовании формиата аммония и ацетата аммония результаты по извлечению урана сопоставимы и находятся на уровне 99 %. Однако использование формиата аммония позволяет получить более концентрированные растворы урана. Также стоит отметить, что при использовании в качестве реэкстрагента ацетата аммония в реэкстракте возможно образование твёрдой фазы

ацетата уранила, что может усложнить процесс реэкстракции, так как потребует применения дополнительного оборудования для разделения жидкой и твёрдой фаз.

### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

Предложены эффективные реэкстрагенты для извлечения урана из 30%-ного раствора ТБФ в декане, позволяющие реэкстрагировать уран за 1-2 цикла. Коэффициенты распределения урана для предлагаемых реэкстрагентов составляют 0,005–0,01.

Для получения наибольшей концентрации урана в реэкстракте реэкстрагировать выгоднее 2-3 моль/л растворами формиата и ацетата аммония. При использовании ацетата аммония реэкстракт будет содержать не более 70–100 г/л урана, при использовании формиата аммония – не более 180–250 г/л.

Таблица

Реэкстракция урана из насыщенного ураном 30%-ного раствора ТБФ  
в декане растворами формиата и ацетата аммония

<b>Реэкстракция 2 моль/л ацетатом аммония</b>						
Параметры	Исходный раствор		Распределение урана по ступеням реэкстракции			
			Реэкстракция № 1, $V_{\text{г}} / V_{\text{о}} = 1,2$		Реэкстракция № 2, $V_{\text{г}} / V_{\text{о}} = 0,1$	
	г/л	%	г/л	%	г/л	%
$[U]_{\text{орг}}$	116	100	1	0,83	0,091	0,076
$[U]_{\text{вод}}$	–	–	99,17	99,17	9,09	90,9
Степень извл. U, %	–	–	–	99,17	–	99,92
<b>Концентрация урана в объединённом реэкстракте 92,23 г/л, объём 1,3 л.</b>						
<b>Реэкстракция 2 моль/л формиатом аммония</b>						
Параметры	Исходный раствор		Реэкстракция № 1, $V_{\text{г}} / V_{\text{о}} = 0,9$		Реэкстракция № 2, $V_{\text{г}} / V_{\text{о}} = 0,1$	
	г/л	%	г/л	%	г/л	%
$[U]_{\text{орг}}$	116	100	1,32	1,1	0,12	0,1
$[U]_{\text{вод}}$	–	–	131,87	98,9	12	90,9
Степень извл. U, %	–	–	–	98,9	–	99,9
<b>Концентрация урана в объединённом реэкстракте 119,88 г/л, объём 1 л.</b>						

ЛИТЕРАТУРА

1. Тураев Н.С., Жерин И.И. Химия и технология урана. – М.: Руда и металлы, 2006. – 396 с.
2. Morss L.R., Edelstein N.M., Fuger J. The Chemistry of the Actinide and Transactinide. – 4th ed. – Netherlands: Springer. – 2010. – V. 1–6. – 4191 p.
3. Пат. № 2481411 Российская Федерация. Способ переработки урановых руд / Филимонов В.Т., Кузнецов Р.А., Кузнецова Н.В., Ядовин А.А. – 2013.
4. Скрипченко С.Ю. и др. Повышение эффективности процесса рекстракции урана за счет применения карбамида // Физика. Технологии. Инновации: сборник материалов III Международной молодежной научной конференции. Екатеринбург, 16–20 мая 2016 г. – Екатеринбург: УрФУ, 2016. – С. 24–28.
5. Пат. 2114469 Российская Федерация, МПК G 21 F 9/06, G 21 C 19/46. Способ экстракционной переработки урансодержащих растворов / Хандорин Г.П., Короткевич В.М. и др.; заявитель и патентообладатель: химический комбинат. – № 97100868/25, заявл. 22.01.1997; опубл. 27.06.1998. – 8 с.

УДК 546.831 + 621.039.763

© 2023

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЦИРКОНИЯ-95 В ДОННЫХ  
ОТЛОЖЕНИЯХ РЕКИ ТЕЧИ В 1952–1955 ГОДАХ

Ю.Г. Мокров

Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"

Работа направлена на реконструкцию параметров источника облучения жителей, проживавших в 1949–1956 гг. на берегах р. Течи, и посвящена изучению миграции  $\gamma$ -излучающих нуклидов (ГИН), и конкретно циркония-95 ( $^{95}\text{Zr}$ ) и ниобия-95 ( $^{95}\text{Nb}$ ), в речной системе. Известно, что  $^{95}\text{Zr}$  обладает аномально высокими сорбционными свойствами и практически полностью и необратимо сорбируется донными отложениями (ДО) и взвесью уже в районе точки сброса жидких радиоактивных отходов (ЖРО) и поэтому далее может мигрировать только с твёрдым стоком. Ранее было показано, что масштабное радиоактивное загрязнение реки произошло в сравнительно короткий период времени с июля по октябрь 1951 г., когда расход воды в верховье изменялся от 8 до 30 м<sup>3</sup>/с. При таких режимах водного стока происходит интенсивное взмучивание (эрозия) наиболее загрязнённых ДО в районе точки сброса ЖРО, перенос и осаждение образовавшихся взвесей на всём протяжении реки. После октября 1951 г., когда сбросы ЖРО в реку сократились на 2–3 порядка величины, распределение  $^{95}\text{Zr}$  в ДО определялось только радиоактивным распадом и переносом взвешенных и донных наносов. Рассмотрены особенности существовавших в 1950-х гг. методов измерений удельной активности (УА) суммы  $\beta$ -излучающих нуклидов (БИН),  $A_\Sigma$  (мкКи/кг), и суммы ГИН,  $M_\Sigma$  (мкг-экв. Ра/кг). Показано, что использование отношения  $R_\Sigma = M_\Sigma / A_\Sigma$  в качестве критерия позволяет получить новую информацию о содержании  $^{95}\text{Zr}$  в ДО и гарантированно выявить из всей совокупности архивных данных пробы ДО с преобладающим вкладом  $^{95}\text{Zr}$  ( $M_{\text{Zr}}$ ) и  $^{95}\text{Nb}$  ( $M_{\text{Nb}}$ ) в  $M_\Sigma$ . Анализ результатов архивных измерений УА проб ДО, отобранных на различных участках р. Течи в 1952, 1954 и 1955 гг., с использованием критерия  $R_\Sigma = M_\Sigma / A_\Sigma$  позволил оценить значения  $M_\Sigma \approx M_{\text{Zr}} + M_{\text{Nb}}$  и провести пересчёт этих результатов с учётом радиоактивного распада на 01.11.1951 г. Результаты измерений  $M_\Sigma$ , выполненных в 1952, 1954 и 1955 гг. и приведённых к 01.11.1951 г., оказались близки между собой, хотя общее снижение активности за счёт радиоактивного распада достигало ~10 млн раз. Показано, что УА  $^{95}\text{Zr}$  в ДО реки по состоянию на ноябрь 1951 г. оставалась практически постоянной на протяжении всей реки. Эти результаты позволяют по-новому подойти к задаче реконструкции дозы внешнего облучения для жителей р. Течи.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: РЕКА ТЕЧА, БЕТА- И ГАММА-ИЗЛУЧАЮЩИЕ НУКЛИДЫ, НИОБИЙ-95, ЦИРКОНИЙ-95, ГАММА-ЭКВИВАЛЕНТ АКТИВНОСТИ, ТОРЦЕВОЙ СЧЁТЧИК, КОЭФФИЦИЕНТ ПОГЛОЩЕНИЯ БЕТА-ИЗЛУЧЕНИЯ, СОРБЦИОННАЯ СПОСОБНОСТЬ

## ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Настоящая работа является логичным продолжением более ранних исследований [1, 2], где были получены новые данные, важные для ретроспективной дозиметрии населения, проживавшего в 1950-х гг. на р. Тече. В работах [1, 2] использовались архивные (1952 г.) результаты измерений удельной активности (УА) воды для суммы  $\beta$ -излучающих нуклидов (БИН),  $A_\Sigma$  (мкКи/л), и суммы  $\gamma$ -излучающих нуклидов

(ГИН),  $M_\Sigma$  (мкг-экв. Ра/л), на верхнем участке р. Течи. Значения  $A_\Sigma$  определялась путём измерения скорости счёта  $\beta$ -частиц торцевым счётчиком, а  $M_\Sigma$  – скорости счёта  $\gamma$ -квантов на счётчике Гейгера-Мюллера с медным катодом [3–5].

Сравнение экспериментальных значений отношения  $R_\Sigma = M_\Sigma / A_\Sigma$  с соответствующими теоретическими (расчётными) значениями  $R_j = M_j / A_j$ , полученными отдельно для каждого  $j$ -го ГИН с учётом исторических особенностей



проведения радиометрических измерений в 1950-х гг., позволило получить новую информацию о содержании ГИН в речной воде, в частности [1, 2]:

1. До середины 1950-х гг. радиационная обстановка на верхних участках р. Течи преимущественно определялась  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$ . Причём до "промывки" Кокшаровского и Метлинского прудов (КП и МП) в октябре 1951 г. УА  $^{95}\text{Nb}$  в воде на верхнем и среднем участках реки достигала 300 кБк/л, что могло приводить к значительному внутреннему облучению.

2. Мощность экспозиционной дозы (МЭД) в прибрежных районах верхнего участка реки (выше КП) характеризовалась сильной изменчивостью и определялась излучением  $^{95}\text{Zr}$ , а радиационная обстановка на всём протяжении заболоченной поймы ниже МП характеризовалась равномерным квазипостоянным распределением МЭД и определялась излучением  $^{95}\text{Nb}$ .

3. Показано, что  $^{95}\text{Nb}$  мог поступать в воды реки как непосредственно со сбросами ЖРО (внешний источник), так и при выходе ядер отдачи из поверхностного слоя ДО после распада  $^{95}\text{Zr}$  (внутренний источник). В период интенсивных сбросов ЖРО (до октября 1951 г.) основным источником поступления  $^{95}\text{Nb}$  в речную систему был внешний источник. Однако, когда сбросы ЖРО в реку сократились на 2-3 порядка величины, основным источником поступления  $^{95}\text{Nb}$  в водную систему стал внутренний источник.

4. В первом полугодии 1952 г. реальная УА  $^{95}\text{Nb}$  в речной воде более чем в 10 раз превышала измеренные на торцевом счётчике значения  $A_{\Sigma}$ , поскольку активность  $^{95}\text{Nb}$  практически не регистрировалось на торцевом счётчике.

5. Мощность внутреннего источника поступления  $^{95}\text{Nb}$  в речной поток снижалась во времени по экспоненциальному закону с периодом полураспада  $^{95}\text{Zr}$ .

6. Все результаты исследований [1, 2] были получены на основе публикаций 1970–1980-х гг. [6–8], где указывалось, что  $^{95}\text{Nb}$  обладает аномально низкой сорбционной способностью, а  $^{95}\text{Zr}$ , наоборот, хорошо сорбируется ДО и взвесями и в речных потоках переносится только в виде взвешенных или донных наносов.

7. В 1952 г. значения УА  $^{95}\text{Nb}$  в воде КП (1,5 км от точки сброса ЖРО), в с. Метлино

(7 км) и в п. Надыров мост (42 км) практически совпадали, что подтверждает аномально высокую миграционную (низкую сорбционную) способность  $^{95}\text{Nb}$ .

Целью данной работы является получение дополнительных подтверждений результатов и выводов ранее выполненных исследований [1, 2] о механизме миграции и распределения  $^{95}\text{Zr}$  в речной системе на основе анализа результатов архивных измерений УА БИН и ГИН для ДО р. Течи в 1952–1955 гг.

### ВЕРИФИКАЦИЯ РЕЗУЛЬТАТОВ РАДИОМЕТРИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЙ

В 1952–1955 гг. масштабные работы по отбору в заданных точках контроля (ТК) проб ДО на различных участках р. Течи (рис. 1) проводились практически ежегодно по специальным программам. Пробы отбирались [3] при помощи специального пробоотборника для исключения нарушения структуры ДО. Керна ДО отбирался в стеклянную трубку внутренним диаметром 22 мм. Если пробы ДО отбирали с лодки или с мостков, то стеклянную трубку закрывали с двух концов пробками для транспортировки в лабораторию. Если пробы отбирали из шурфа (при спущенной воде), то для каждой глубины пробу ДО укладывали в отдельную стеклянную банку. Отобранные пробы ДО доставляли в лабораторию, где проводили измерения УА  $A_{\Sigma}$  и  $M_{\Sigma}$  [3].

Предварительно пробы ДО высушивали до постоянного веса при температуре 105–110 °С, а затем растирали в агатовой ступке. Радиометрические измерения проводили на установке "Б" с торцевым счётчиком и диаметром слюдяного окна, равным 22, 40 или 70 мм. В зависимости от активности пробы на мишень наносили навеску высушенных ДО массой 10–200 мг, которую с активной части заклеивали папиросной бумагой для предотвращения потери нанесённого вещества [3]. Таким образом, толщина активного слоя (при равномерном нанесении/распределении материала пробы ДО на мишени) могла изменяться в диапазоне от 3 до 55 мг/см<sup>2</sup>.

Использованные радиометрические методики определения активности БИН могли приводить к существенному занижению

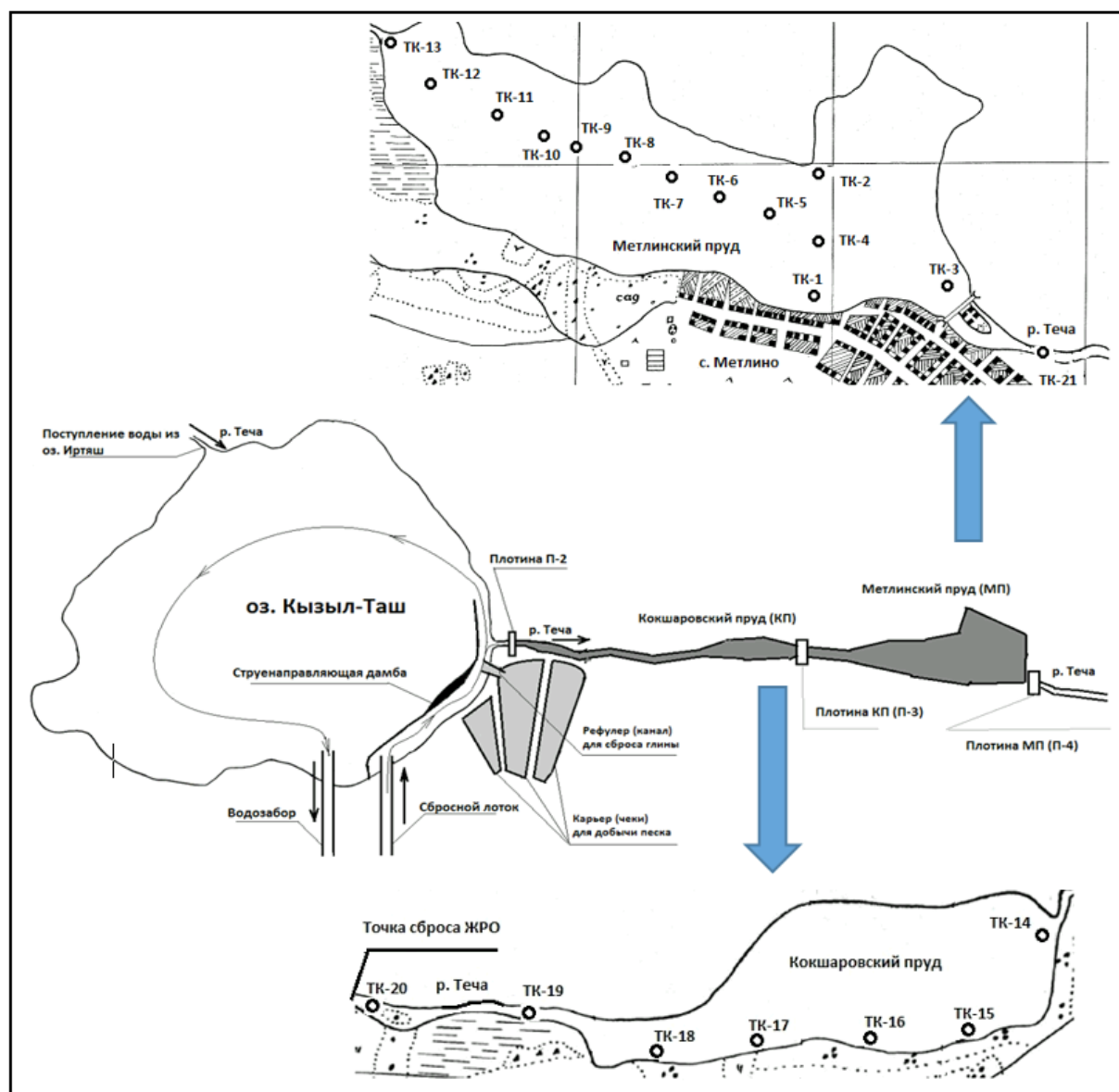


Рис. 1. Карта-схема верховья р. Течи и положение точек контроля (ТК) загрязнения донных отложений (1951–1955 гг.)

результатов измерений [9, 10], которое было обусловлено невозможностью корректного учёта (для смеси БИН неизвестного состава) поглощения мягкого  $\beta$ -излучения в слое материалов толщиной  $d$  между измеряемой пробой и торцевым счётчиком (материал пробы,

папиросная бумага, окошко детектора и слой воздуха). В 1950-х гг. при измерениях  $A_{\Sigma}$  проб ДО типичное (референтное) значение  $d_R$  составляло  $16 \text{ мг/см}^2$ , а для проб с низкой активностью – до  $36 \text{ мг/см}^2$  и более.

Значения коэффициентов поглощения

β-частиц для  $j$ -го БИН  $K_j$  определяли экспериментально заранее для различных значений толщины поглощающего слоя  $d$  с использованием специальных эталонных проб, полученных методом радиохимического выделения (табл. 1) [3–5].

В тех случаях, когда после радиохимического выделения в изучаемой пробе присутствуют два разных изотопа одного элемента (например,  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$  или  $^{141}\text{Ce}$  и  $^{144}\text{Ce}$ ), то в чистом виде значение  $K_j$  можно получить только для более долгоживущего изотопа (после соответствующей выдержки для распада короткоживущего изотопа). В таких случаях значения  $K_j$  для короткоживущего изотопа в 1950-х годах получить было невозможно, а в данной работе для грубых оценок использовали известные значения  $K_j$  для других БИН (аналогов), обладающих близкими значениями средней и максимальной энергии β-частиц.

Радиометрические измерения проб ГИН были основаны [3, 9] на сравнении (в одинаковых геометрических условиях) ионизирующей способности анализируемого и эталонного источника, содержащего  $^{226}\text{Ra}$ . Использовался счётчик Гейгера-Мюллера АММ-4. При измерении УА смеси продуктов деления определялся γ-эквивалент суммы радионуклидов  $M_\Sigma$  (мкг-экв. Ра/кг), который связан с истинной УА

каждого  $j$ -го нуклида смеси  $A_j$  (мкКи/кг) соотношениями:

$$M_\Sigma = \sum_{j=1}^n A_j \cdot m_j \cdot Z_j, \quad A_\Sigma = \sum_{j=1}^n A_j \cdot K_j,$$

где  $m_j$  – γ-эквивалент  $j$ -го нуклида, мкг-экв. Ра/мкКи;

$Z_j$  – поправочный коэффициент, учитывающий чувствительность счётчика Гейгера-Мюллера с медным катодом типа АММ-4 при регистрации мягкого γ-излучения. Для всех рассматриваемых ГИН можно принимать значения коэффициента  $Z_j = 1$ , за исключением  $^{141}\text{Ce}$  ( $Z_j = 3,6$ ) и  $^{144}\text{Ce}$  ( $Z_j = 5,0$ ).

Для сохранения неизменными исторических результатов измерений, приведённых в архивных документах, будем использовать внесистемные единицы измерений (Ки и г-экв. Ра), которые были приняты в 1950-х гг.

Значение ионизирующей способности γ-излучения, отнесённое к единице активности ( $m_j$ ), уникально для каждого ГИН. Поэтому измеренные для конкретной пробы значения  $R_\Sigma = M_\Sigma / A_\Sigma$  могут при некоторых условиях характеризовать состав γ-излучателей. В табл. 1 приведены результаты расчётов изменения отношения  $R_j = M_j / A_j = m_j \cdot Z_j / K_j$  при проведении гипотетических измерений активности  $j$ -го

Таблица 1

Расчётные значения отношения  $R_j = M_j / A_j = m_j \cdot Z_j / K_j$  (мкг-экв. Ра/мкКи) для основных ГИН при проведении измерений активности методом счёта β-частиц на торцевом счётчике в зависимости от толщины слоя  $d$  и при измерении скорости счёта γ-квантов на счётчике Гейгера-Мюллера с медным катодом типа АММ-4 [6–8, 11, 12]

Нуклид	$T_{1/2}, ^4 \text{ сут}$	$K_d, ^5 \text{ м}^3/\text{кг}$	Толщина поглощающего слоя $d$ , мг/см <sup>2</sup>				
			0,0	10,8	16,2	27,0	34,8
$^{95}\text{Zr}$	64	61,0	0,485	0,87	1,23	1,7	3,2
$^{95}\text{Nb}$	35,2	0,091	0,508	7,15	36,3	51	73
$^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$	64+35,2	–	0,50	2,4	3,7	5,2	9,7
$^{103}\text{Ru} ^1)$	39,4	37,0	0,35	1,4	2,9	15	– <sup>3)</sup>
$^{106}\text{Ru}$	368	37,0	0,137	0,140	0,141	0,143	0,146
$^{141}\text{Ce} ^2)$	32,5	37,0	0,184	0,238	0,263	0,345	0,40
$^{144}\text{Ce} + ^{144}\text{Pr}$	285	37,0	0,16	0,21	0,22	0,24	0,26
$^{137}\text{Cs}$	11 000	27,0	0,39	0,53	0,62	0,68	0,92

Примечание: <sup>1)</sup> аналог  $^{147}\text{Pm}$ ; <sup>2)</sup> аналог  $^{90}\text{Sr}$ ; <sup>3)</sup> нет данных; <sup>4)</sup> период полураспада; <sup>5)</sup> коэффициент распределения между твёрдой фазой (ДО, взвеси) и водой.

ГИН на счётчике АММ-4 и на торцевом счётчике в зависимости от толщины слоя  $d$ .

Расчёты отношения  $R_j$  для суммы нуклидов  $A(^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb})$  выполнены в предположении, что  $A(^{95}\text{Nb}) = 2,2 \cdot A(^{95}\text{Zr})$  (равновесное состояние) и при этом  $M(^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}) = 1,6$  мг-экв. Ра/мКи. Результаты модельных расчётов (табл. 1) показывают, что при  $d > 16,2$  мг/см<sup>2</sup> значения  $R_j$  для суммы  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$  и для  $^{103}\text{Ru}$  могут превышать 3,5 мкг-экв. Ра/мКи, а при  $d > 34,5$  мг/см<sup>2</sup> значения  $R_j$  для суммы  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$  может превышать 10 мкг-экв. Ра/мКи.

В 1951 г., в период максимальных сбросов ЖРО в р. Течу, УА  $^{103}\text{Ru}$  в ЖРО, была в ~30 раз больше, чем УА  $^{106}\text{Ru}$  ( $A_{106}/A_{103} \approx 0,033$ ), а радиационные характеристики нуклидов рутениевой группы в ЖРО определялись, главным образом, изотопом  $^{103}\text{Ru}$  [13]. Подобное соотношение между УА  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$  наблюдалось в воде и ДО реки (с постепенным возрастанием доли  $^{106}\text{Ru}$ ), поскольку изотопы одного и того же элемента не могут быть разделены между собой никакими химическими способами, а соотношение  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$  определялось только длительностью нахождения изотопов в речной системе. В 1952–1954 гг., через 1, 2 и 3 года после окончания интенсивных сбросов ЖРО, отношение УА  $^{106}\text{Ru}$  к  $^{103}\text{Ru}$  в ДО должно быть равно  $A_{106}/A_{103} \sim 10, \sim 3300$  и  $\sim 1\,100\,000$  соответственно. В этот период времени, радиационные характеристики нуклидов рутениевой группы в ДО реки определялись изотопом  $^{106}\text{Ru}$ , для которого  $R_j = M_j / A_j \approx 0,14$  мкг-экв. Ра/мКи. Таким образом, для проб ДО, отобранных после октября 1952 г. и у которых измеренное значение  $R_\Sigma = M_\Sigma / A_\Sigma$  больше ~3 мкг-экв. Ра/мКи, радиационные характеристики гарантированно определялись только  $^{95}\text{Zr}$  и/или  $^{95}\text{Nb}$ .

## ФОРМИРОВАНИЕ ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЙ РЕКИ ТЕЧИ 1951–1955 ГОДАХ

### *Источники поступления взвешенных частиц в речную систему*

Основным природным источником поступления взвешенных частиц в р. Тече является поверхностно-склоновый сток с водосборной территории [15, 16]. В 1950-х гг. в верховье р. Течи, существовало, по крайней мере, ещё

два мощных техногенных источника поступления взвешенных веществ в реку.

Во-первых, через водосброс плотины П-2 в реку поступали взвеси в виде частиц глины и ила (до 200–300 мг/л) в результате эксплуатации рефулера [3, 14], который использовался для добычи песка для нужд строительства. Добыча песка осуществлялась методом гидронамыва из карьера, расположенного на берегу водоёма В-2 в 100–300 м южнее плотины П-2 (рис. 1). При обследовании плотины П-2 в августе 1952 г. комиссия, возглавляемая А.Н. Мареем, отмечала [14]: "В результате длительного поступления в озеро Кызыл-Таш стоков с рефулера, содержащих взвесь глины, вода в нижней части водоёма имеет "белесоватый" оттенок, а на дне перед плотинной образовались отложения мелких фракций песка". Карьер по добыче песка был закрыт в конце 1952 г., и начиная с 1953 г. этот источник поступления взвесей перестал существовать.

Вторым техногенным источником поступления взвешенных веществ в р. Тече являлись нерастворимые в воде осадки солей, содержащиеся в сбросах ЖРО. Осадок в значительной степени состоял из гидроокиси железа и органических веществ, а по гранулометрическому составу соответствовал градации "глина" с характерным размером частиц 2–4 мкм [3, 9, 14]. Путём центрифугирования отобранных проб было установлено, что активность осадка составляла от 40 до 90 % от активности исходного раствора [3]. Этот источник поступления взвесей в р. Тече прекратил свое существование 28 октября 1951 г., когда основная часть технологических отходов была направлена на сброс в водоём Карачай.

### *Моделирование переноса взвесей с речным потоком*

В работах [15, 16] на основе программно-го комплекса "НЕС-6" [17] с использованием реальных данных о рельефе речной долины, гидрологическом режиме р. Течи, данных о гранулометрическом составе взвешенных наносов и донных отложений, созданы гидродинамические модели р. Течи и выполнены расчётные исследования по моделированию процесса радиоактивного загрязнения речной системы в

результате поступления, взмучивания и переноса загрязнённых радионуклидами взвешенных частиц с водным потоком в 1949–1952 гг.

Основным параметром, определяющим перенос и седиментацию взвесей, а также эрозию ДО, является водный сток. Анализ архивных данных позволил выделить следующие характерные режимы водного стока через плотину П-4:

- умеренные сбросы с расходом  $\sim 1,2$  м<sup>3</sup>/с (с 1949 г. по май 1951 г.);
- форсированные сбросы с расходом 7,5–8,5 м<sup>3</sup>/с (июнь – сентябрь 1951 г.);
- "промывка" водоёмов В-3 и В-4 с расходом 30 м<sup>3</sup>/с (17–22 октября 1951 г.).

Расчётные исследования позволили сделать следующие выводы [9, 15, 16]:

- крупномасштабное загрязнение р. Течи (на всём её протяжении) могло сформироваться только в период форсированных сбросов, когда расход воды через плотину П-4 был увеличен до  $\sim 8$  м<sup>3</sup>/с, и/или в период "промывки" (октябрь 1951 г.);
- при всех гидрологических режимах течения с расходом воды в устье меньше  $\sim 6,5$  м<sup>3</sup>/с значимой водной эрозии ДО не наблюдается на всём протяжении реки;

– при водном стоке  $\sim 9,5$  м<sup>3</sup>/с интенсивный размыв ДО отмечается только на одном участке, удалённом от плотины П-4 на расстояние  $\sim 45$  км;

– при паводковых режимах водного стока (более 20 м<sup>3</sup>/с) интенсивность водной эрозии на среднем участке реки возрастает в десятки раз, возникают новые (дополнительные) участки размыва ДО и происходит образование донных наносов.

#### РАДИАЦИОННЫЕ ПАРАМЕТРЫ ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЙ

*Август 1951 г. – июнь 1952 г.*

В табл. 2 приведены результаты измерений УА ДО на верхнем участке реки (в акватории КП и МП, рис. 1) за период с августа 1951 г. по июнь 1952 г.

Подробный анализ результатов этих измерений приведён в работе [1], где, в частности, было показано, что аномально большие значения  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma} \approx 5\text{--}10$  мг-экв. Ра/мКи для проб ДО, отобранных в июне 1952 г., свидетельствуют о преобладающем вкладе излучения <sup>95</sup>Zr и <sup>95</sup>Nb в УА ДО. Таким образом, в 1952 г. радиацион-

Таблица 2

Значения удельной активности верхнего слоя донных отложений для  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучающих радионуклидов ( $A_{\Sigma}$  и  $M_{\Sigma}$ ) и их отношение ( $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$ ) на различных участках верховья р. Течи за период 1951–1952 гг. [3, 14, 18]

Номер точки*	$A_{\Sigma}$ , мКи/кг			$M_{\Sigma}$ , мг-экв. Ра/кг	$M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$ , мг-экв. Ра/мКи
	09.08.1951	17.10.1951	24.06.1952	24.06.1952	24.06.1952
ТК-20	20,0	–	17,0	87,0	5,1
ТК-19	18,0	220,0	–	–	–
ТК-18	18,0	220,0	19,2	168,0	8,75
ТК-16	6,0	1,5	–	–	–
ТК-14	20,6	19,0	28,4	132,0	4,65
ТК-10	0,145	–	–	–	–
ТК-7	0,016	4,6	1,39	15,0	10,8
ТК-4	0,032	–	12,6	8,0	0,63
ТК-3	1,6	–	5,5	41,0	7,5
ТК-2	–	3,6	10,9	65,0	6,0
ТК-1	–	0,91	2,2	19,0	8,6

Примечание. \* см. рис. 1 и примечание к табл. 4.



ная обстановка на верхнем участке реки была обусловлена главным образом излучением  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ .

### Лето 1954 г.

Особый интерес представляют результаты обследования УА ДО по всей длине р. Течи, выполненные в 1954 г. [19] (табл. 3), поскольку при этом обследовании пробы ДО отбирали по всей глубине керна, а для каждой пробы ДО измеряли не только УА БИН ( $A_\Sigma$ ), но и УА ГИН ( $M_\Sigma$ ). Анализ табл. 3 позволяет сделать следующие выводы:

– значения УА в различных точках поперечного сечения (створа), на одной и той же глубине ДО, могут отличаться до 10 и более раз,

что связано с особенностями переноса взвешенных и влекомых наносов на непрямолинейных участках реки или на участках, характеризующихся значительной неравномерностью шероховатости (зарастание растительностью) по ширине русла;

– распределение УА по глубине ДО имеет немонотонный характер, причём в ряде случаев абсолютный максимум УА регистрируется на глубинах до (15–20) см, что исключает главенствующую роль диффузионного процесса в миграции радионуклидов по глубине ДО;

– распределение УА по длине р. Течи также имеет немонотонный вид, причём для различных глубин ДО, абсолютный максимум УА часто регистрируется не на верхнем участке реки, а на расстоянии более 100 км, что исклю-

Таблица 3

Распределение удельной активности  $\beta$ -излучающих  $A_\Sigma$  (мкКи/кг) и  $\gamma$ -излучающих нуклидов  $M_\Sigma$  (мкг-экв. Ра/кг) по глубине донных отложений в различных створах р. Течи, соответствующих штатным точкам контроля (ТК), лето 1954 г. [19]

Место отбора пробы *		Интервал слоя донных отложений, см											
		0–5			5–10			10–15			15–20		
		$A_\Sigma$	$M_\Sigma$	$M_\Sigma/A_\Sigma$	$A_\Sigma$	$M_\Sigma$	$M_\Sigma/A_\Sigma$	$A_\Sigma$	$M_\Sigma$	$M_\Sigma/A_\Sigma$	$A_\Sigma$	$M_\Sigma$	$M_\Sigma/A_\Sigma$
ТК-24	ПБ	45	12,3	0,27	8,7	1,7	0,20	0	0,59	–	0,05	0,59	11,8
	С	104	27	0,26	2	0,96	0,48	1,18	1,06	0,90	0,55	0,55	1,0
	ЛБ	9,3	3,7	0,40	1,86	0,8	0,43	–	–	–	–	–	–
ТК-27	ПБ	175	42	0,24	1	2,0	2,0	0,11	1,4	12,7	0,14	0,43	3,1
	ЛБ	123	52,5	0,43	0,45	1,0	2,2	–	–	–	–	–	–
ТК-30	ЛБ	1,57	0,51	0,32	0,47	0,03	0,064	1,37	0	–	1,7	0,6	0,35
	С	3,5	1,75	0,50	0,24	0,53	2,2	0,3	0	–	–	–	–
ТК-34	ПБ	5,1	1,3	0,25	4,9	0,5	0,10	0,9	–	–	0,43	0,76	1,8
	С	7,2	7,6	1,06	4,5	2,2	0,49	1,2	0,2	0,17	–	–	–
	ЛБ	4,9	2,3	0,47	11,2	1,5	0,13	3,1	1,0	0,32	0,34	0,35	1,0
ТК-37	ПБ	1,49	0,54	0,36	0,59	0,45	0,76	0,66	0,75	1,14	–	–	–
	С	3,07	0,66	0,21	0,28	0,63	2,25	0,15	0,63	4,2	0,07	0,42	6,0
	ЛБ	0,55	5,1	9,3	2,36	1,38	0,58	0,25	0,44	1,76	0,65	0,6	0,92
ТК-38	ПБ	0,77	0,47	0,61	0,47	0,39	0,83	0,36	0,94	2,6	0,54	0,45	0,83
	С	0,85	0,85	1,0	0,75	0,53	0,71	0,53	3,3	6,2	2,73	0,83	0,30
	ЛБ	0,5	0,58	1,16	0,11	1,6	14,5	–	–	–	–	–	–
ТК-40	ПБ	1,2	0,8	0,67	0,11	0,4	3,64	0,06	0,21	3,5	–	–	–
	С	0,75	0,7	0,93	0,15	0,4	2,67	0,04	0,52	13,0	–	–	–

Примечание: \* ПБ – правый берег, ЛБ – левый берег, С – средняя часть реки. См. примечание к табл. 4.

чает главенствующую роль сорбционного процесса в миграции радионуклидов вдоль реки.

### Лето 1955 г.

Летом 1955 г. (точная дата неизвестна) в 58 различных точках акватории КП и МП (координаты точек неизвестны) были отобраны керны ДО на глубину до 20 см [20]. Из каждого керна по возможности были отобраны пробы ДО с глубины 0, 5, 10, 15 и 20 см. Анализ проб ДО выполнен для УА суммы БИН (все пробы) и ГИН (выборочно).

Основные результаты измерений [20] представлены на рис. 2 и 3 в виде графиков зависимости отношения ( $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$ ) от  $A_{\Sigma}$  для различных слоёв ДО, которые позволяют сделать следующие выводы:

– кроме поверхностного слоя ДО КП все остальные зависимости могут быть представлены в виде степенной функции (пунктирные линии) с близкими значениями параметров аппроксимации, что может косвенно свидетельствовать о едином механизме формирования загрязнения ДО на акватории МП;

– максимальные значения отношения ( $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$ ) во всех случаях наблюдаются для проб с минимальными значениями  $A_{\Sigma}$ ;

– в каждом слое ДО существуют пробы, у которых значения  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$  больше трёх, что свидетельствует о преобладающем (основном) вкладе  $\gamma$ -излучения  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  или  $^{103}\text{Ru}$  в суммарную  $M_{\Sigma}$ .

### ОБСУЖДЕНИЕ

Сопоставление всех расчётных и экспериментальных данных позволяет сделать следующие обобщения:

1. В табл. 4 приведены некоторые результаты измерений  $M_{\Sigma}$  проб ДО (при  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma} > 3$ ), отобранных 24.06.1952 г. (табл. 2) и в августе 1954 г. (табл. 3), по состоянию на 01.11.1951 г (с расчётной поправкой на распад  $^{95}\text{Zr}$ ), полученные в предположении, что радиационные параметры ( $M_{\Sigma}$ ) рассматриваемых проб ДО определяются преимущественно излучением  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ . Данные табл. 4 показывают, что хотя снижение активности  $^{95}\text{Zr}$  за счёт радиоактивного распада за период времени с 01.11.1951 г.

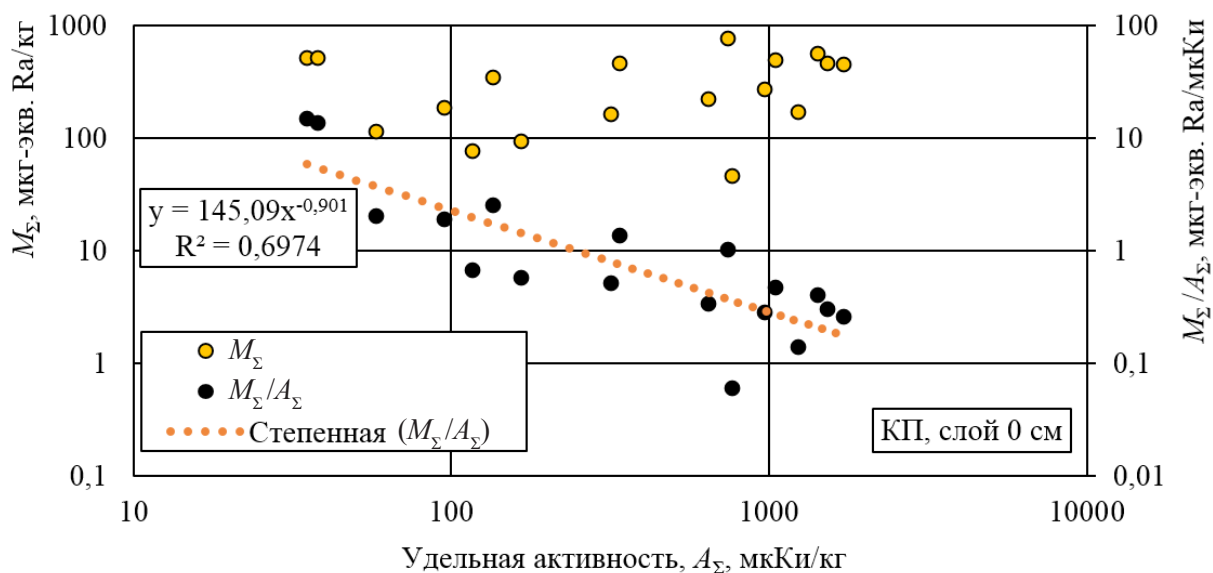


Рис. 2. Зависимость  $M_{\Sigma}$  (светлые точки) и отношения  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$  (тёмные точки) от удельной активности  $A_{\Sigma}$  для поверхностного слоя донных отложений Кокшаровского пруда (КП) (лето 1955 г.) [20]

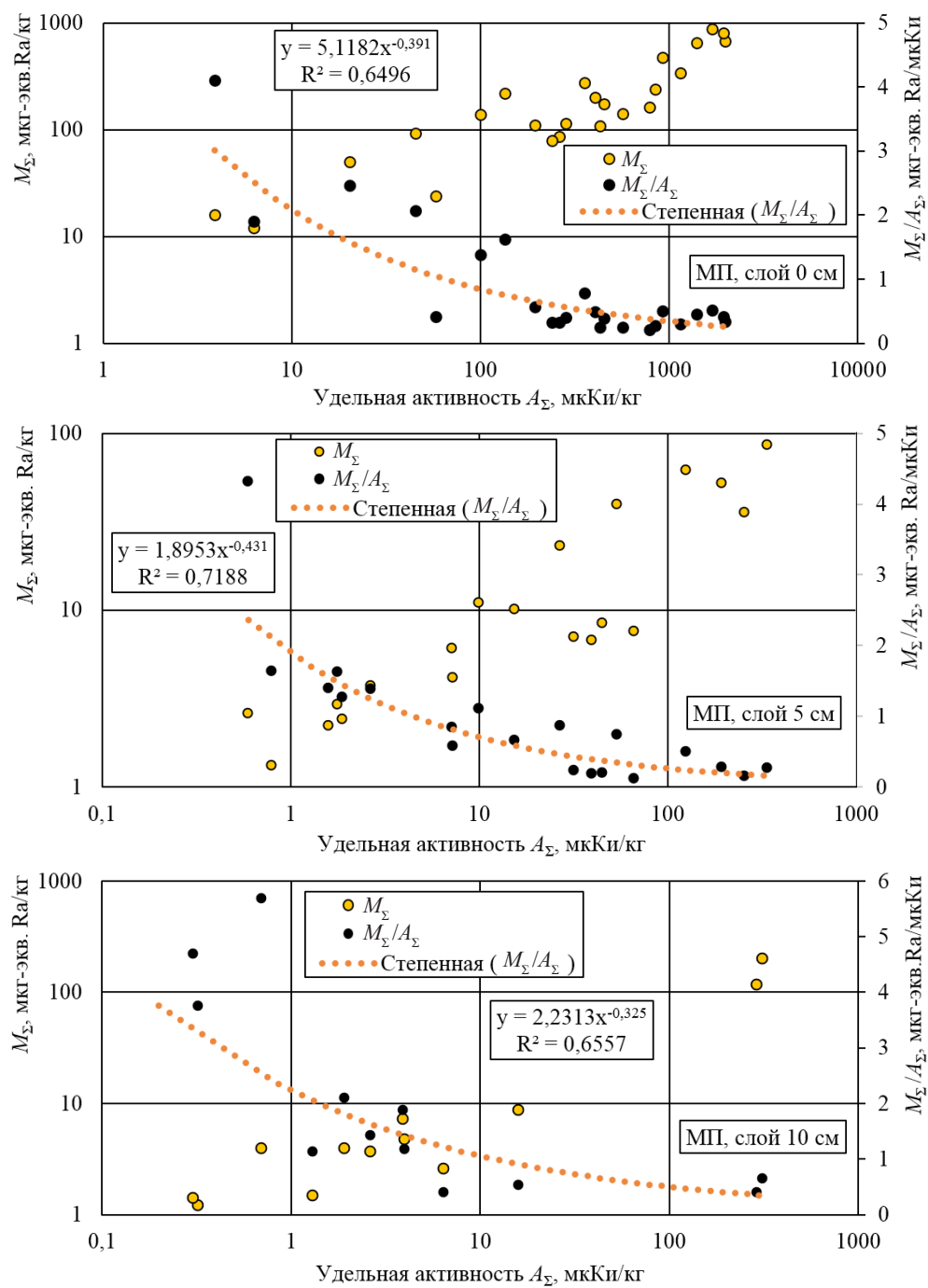


Рис. 3. Зависимость  $M_\Sigma$  (светлые точки) и отношения  $M_\Sigma/A_\Sigma$  (тёмные точки) от удельной активности  $A_\Sigma$  для различных слоёв донных отложений (0, 5 и 10 см) Метлинского пруда (МП) (лето 1955 г.) [20]

Таблица 4

Значения удельной активности  $\gamma$ -излучающих нуклидов  $M_{\Sigma}$  по состоянию на 01.11.1951 г. (с расчётной поправкой на распад  $^{95}\text{Zr}$ ) для проб донных отложений р. Течи

Точки контроля (берег) <sup>1)</sup>	Слой ДО, см	$M_{\Sigma}$ , мг-экв. Ра/кг	Примечание (Расстояние от плотины П-2, км)
Измерено 24.06.1952 г. (см. табл. 2), пересчёт на 01.11.1951 г.			
ТК-20 (-)	П/с <sup>2)</sup>	1140	Точка сброса ЖРО (0,30)
ТК-18 (-)	П/с	2200	Середина КП (1,5)
ТК-14 (-)	П/с	1800	Сброс из КП (3,5)
ТК-7 (-)	П/с	200	Середина МП (5,0)
ТК-4 (-)	П/с	110	МП (-)
ТК-3 (-)	П/с	540	МП (-)
ТК-2 (-)	П/с	850	МП (-)
ТК-1 (-)	П/с	250	МП (-)
Измерено в августе <sup>3)</sup> 1954 г. (см. табл. 3), пересчёт на 01.11.1951 г.			
ТК-24 (ПБ)	15–20	43	с. Теча-Брод (18)
ТК-27 (ПБ)	10–15	102	с. Старое Асаново (34)
ТК-30 (С)	5–10	39	с. Надыров Мост (49)
ТК-34 (ПБ)	20–25	47	с. Муслимово (79)
ТК-37 (ЛБ)	0–5	370	с. Ветроудуйка (105)
ТК-38 (ЛБ)	5–10	120	с. Бродокалмак (109)
ТК-40 (С)	10–15	38	с. Русская Теча (132)

Примечания: <sup>1)</sup> ПБ – правый берег, ЛБ – левый берег, С – средняя часть реки; <sup>2)</sup> П/с – поверхностный слой ДО; <sup>3)</sup> дата измерения проб ДО неизвестна, но условно принята как август 1954 г.

по август 1954 г. достигает  $\sim 74\,000$  раз, но все результаты измерений (для ТК, расположенных ниже средней части МП, ниже ТК-7) совпадают между собой в пределах порядка величины. Указанное совпадение значений  $M_{\Sigma}$  с учётом общего "пятнистого" характера загрязнения следует признать хорошим, поскольку вышеприведённые оценки получены без учёта процесса механического перемешивания первоначального (основного) загрязнения ДО в период "промывки" (октябрь 1951 г.) и последующего (вторичного) наслоения (1951–1954 гг.) более чистых взвешенных и донных наносов.

2. Расчётные значения  $M_{\Sigma}$ , приведённые в табл. 4, следует признать хорошей оценкой для  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$  ( $M_{\Sigma} \approx M_{\text{Zr}} + M_{\text{Nb}}$ ). Вместе с тем, значения  $M_{\Sigma}$  являются консервативной (минимальной) оценкой реальных значений, поскольку они получены с поправкой на радиоактивный распад только  $^{95}\text{Zr}$  и не учитывают вклад в  $M_{\Sigma}$

(для ноября 1951 г.) других относительно короткоживущих ГИН ( $^{103,106}\text{Ru}$ ,  $^{141,144}\text{Ce}$ ,  $^{140}\text{Ba}+^{140}\text{La}$  и др.). Немонотонный ("пятнистый") характер загрязнения (табл. 2–4) ещё раз подтверждает сделанный ранее [9, 15, 16] вывод о том, что основное загрязнение ДО и поймы на всём протяжении р. Течи сформировалось практически одновременно в результате механического переноса загрязнённых радионуклидами взвешенных частиц в период с июля по октябрь 1951 г. и главным образом в период "промывки" КП и МП.

3. Выше было показано, что радиационная характеристика проб ДО с выдержкой более одного года, у которых значение отношения  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$  больше трёх, определяется только УА  $^{95}\text{Zr}$  ( $M_{\text{Zr}}$ ) и  $^{95}\text{Nb}$  ( $M_{\text{Nb}}$ ), то есть в этом случае сумма  $M_{\text{Zr}}$  и  $M_{\text{Nb}}$  практически равна суммарной УА всех ГИН в пробе  $M_{\Sigma}$  ( $M_{\text{Zr}} + M_{\text{Nb}} \approx M_{\Sigma}$ ). При радиоактивном равновесии  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  выпол-

няются следующие соотношения  $M_{Nb} \approx 2,2 \cdot M_{Zr}$  и  $M_{\Sigma} \approx M_{Zr} + M_{Nb} \approx 3,2 \cdot M_{Zr}$ . Следует отметить, что основной (значимый) вклад  $^{95}Zr + ^{95}Nb$  в  $M_{\Sigma}$  может быть и при  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma} < 3$ . Такая ситуация возможна, например, в случае если в рассматриваемой пробе ДО присутствуют радионуклиды, не испускающие при распаде  $\gamma$ -кванты (чистые  $\beta$ -излучатели:  $^{89,90}Sr$ ,  $^{90,91}Y$  и др.). Но при отсутствии достоверных данных о радионуклидном составе БИН (и ГИН) гарантировать преобладающий вклад  $\gamma$ -излучения  $^{95}Zr$  и  $^{95}Nb$  в суммарную внешнюю мощность дозы можно только при  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$  больше  $\sim 3$ .

4. Сопоставление данных табл. 2–4 с учётом ранее выполненных исследований [1, 2] позволяет рассматривать следующий сценарий загрязнения ДО:

1) В период ограниченных водных сбросов (до июля 1951 г.) основная часть сбрасываемого в реку  $^{95}Zr$  накапливалась на верхнем участке реки вблизи точки сброса ЖРО в процессе сорбции ДО или в результате осаждения загрязнённых взвесей на дно. В р. Течу через плотину П-4 могла поступить только незначительная часть  $^{95}Zr$ , сорбированного на мельчайших взвесах.

2) Весенние паводки 1950–1951 гг. не могли привести к масштабному загрязнению поймы реки, поскольку расход воды через плотину П-4 в период паводков практически не отличался от меженного и не мог привести к взмучиванию загрязнённых ДО и выносу образующихся взвесей за пределы МП [9, 15, 16].

3) Форсированный режим водного стока (июль – октябрь 1951 г.) и особенно режим "промывки" (17–22 октября 1951 г.) значительно интенсифицировали процесс образования взвесей в результате взмучивания (эрозии) наиболее загрязнённых ДО, механического переноса взвесей с водным потоком за пределы плотины П-4 и последующее осаждения загрязнённых взвесей на поверхности ДО и поймы по всей длине р. Течи.

4) Следует отметить, что в период "промывки" водоёмов был осуществлён самый мощный кратковременный сброс ЖРО (более 1,2 млн Ки за 10 сут) [21].

5) После окончания "промывки", начиная с ноября 1951 г., сброс ЖРО сократился на 2–3 порядка величины, а радионуклидный состав

сбрасываемых ЖРО практически не изменился [3]. Интенсивная эрозия (размыв) ДО на участке ниже плотины МП наблюдалась только при паводковом режиме водного стока и только на отдельных (3–5) участках реки, а поступление "чистых" взвесей с поверхностно-склоновым стоком происходит в течении всего весенне-летне-осеннего периода. Поэтому изменение УА ДО стало определяться процессами радиоактивного распада и образования относительно чистых донных наносов поверх ранее загрязнённых слоёв ДО. Данные табл. 2 показывают, что уже к середине 1952 г. основными ГИН, определяющими МЭД, являлись  $^{95}Zr + ^{95}Nb$ , а вклад излучения  $^{137}Cs$ ,  $^{106}Ru$  и  $^{144}Ce$  был незначительным.

5. Последующее (после октября 1951 г.) перераспределение УА БИН и ГИН по объёму ДО р. Течи (табл. 3) происходило в результате осаждения взвешенных и переноса влекомых (донных) наносов. Интенсивность процессов накопления ДО на каждом участке реки определялась скоростью водного потока, которая в свою очередь (даже при постоянном расходе воды в реке) зависит от морфологического строения поймы и русла (наличие плёсов, перекатов, порогов, пойменных озёр, водной и прибрежной растительности и др.).

В каждый период времени нарастание/деградация слоя ДО происходила из материалов с разной УА и радионуклидным составом загрязнения. Так, например, при повышенном водном стоке через плотину П-4 происходит взмучивание (эрозия) ДО на самом верхнем (более загрязнённом) участке реки и перенос образовавшихся взвешенных частиц на менее загрязнённые нижележащие участки. В период весеннего паводка происходит осаждение на поверхность ДО относительно "чистых" взвешенных частиц, поступивших в реку с поверхностно-склоновым стоком с водосборной территории реки. В период летне-осенней межени на поверхность ДО откладывается детрит, образующийся при отмирании водной биоты (фито- и зоопланктон, водоросли, и др.). В результате на каждом участке реки ДО представляют собой многослойную композицию, состоящую из различных материалов с разной толщиной, нуклидным составом и УА. Таким образом, распределение УА по глубине ДО (по-



добно годовым кольцам деревьев) содержит информацию о характере и истории их предшествующего загрязнения.

6. Сорбционно-десорбционные и диффузионные процессы могут играть заметную роль в миграции только для нуклидов с легко обратимыми и низкими сорбционными свойствами ( $^{89,90}\text{Sr}$ ,  $^{140}\text{Ba}$  и др.) [6–9].

7. В 1955 г. в КП максимальные значения УА ДО наблюдались для верхнего слоя (рис. 2). Значения УА для разных точек акватории отличались широкой вариабельностью. Причём от верхней до нижней части КП значения  $A_{\Sigma}$  снижались в 50 раз (от 1710 до 35 мкКи/кг), а значения  $M_{\Sigma}$  – в 15 раз (от 750 до 50 мкг-экв. Ра/кг), но при этом отношение  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$  возрастало в ~250 раз (от 0,061 до 15,1 мкг-экв. Ра/мкКи). В точках с минимальными значениями УА БИН ( $A_{\Sigma} \approx 35$  мкКи/кг) были зарегистрированы максимальные значения  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma} \approx 15,1$  мкг-экв. Ра/мкКи. Это означает (табл. 1), что верхний слой ДО в 1955 г. мог быть преимущественно загрязнён  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$  и/или  $^{103}\text{Ru}$ , которые поступали со "свежими" ЖРО. В таких условиях для ДО однозначно разделить активность  $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$  и  $^{103}\text{Ru}$  невозможно.

8. Во втором полугодии 1955 г. [20] среднее значение УА воды на входе в КП (ТК-19) составляло  $M_{\Sigma}=0,22$  мкг-экв. Ра/л, на выходе из КП (ТК-14) снижалось почти в 10 раз до  $M_{\Sigma}=0,025$  мкг-экв. Ра/л, а на выходе из МП (ТК-21) было всего в 2 раза меньше,  $M_{\Sigma}=0,012$  мкг-экв. Ра/л. Средний расход воды через КП и МП составлял ~35 тыс. м<sup>3</sup>/сут. Расчёты, выполненные с использованием одномерной стационарной модели [1], позволяют оценить мощность источника поступления  $^{95}\text{Nb}$  в верховье р. Течи на выходе из МП (ТК-21):

$A_{\text{Nb}} \approx 0,025$  мкКи/л (~1 кБк/л), при жидком радиоактивном стоке ~0,9 Ки/сут (3,3 ГБк/сут).

9. В табл. 5 приведены результаты измерений УА для проб ДО МП, отобранных в октябре 1955 г. с глубины более 5 см, у которых значения  $M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$  больше 3 мкг-экв. Ра/мкКи. Причём значения  $M_{\Sigma}$  дополнительно приведены с учётом радиоактивного распада по состоянию на 01.11.1951 г. (окончание "промывки" КП и МП).

Сравнение данных табл. 4 и 5 для МП показывает, что результаты измерений  $M_{\Sigma}$ , выполненные в октябре 1955 г. и приведённые к 01.11.1951 г. (снижение активности за счёт радиоактивного распада составило 7,3 млн раз), в пределах одного порядка величины совпадают с соответствующими значениями  $M_{\Sigma}$ , которые были измерены в июне 1952 г. Это означает, что слои ДО на глубине более 5 см содержат ГИН, поступившие в МП со сбросами ЖРО в 1951 г. Указанное расхождение, помимо естественного "пятнистого" характера загрязнения ДО, может быть обусловлено дополнительным поступлением загрязнённых взвесей с вышележащих участков (из КП) в период повышенных водных сбросов из оз. Кызыл-Таш, например, в предпаводковый период или в период зимней продувки 1953–1954 гг. КП и МП (было сброшено 12 млн м<sup>3</sup>) [3].

## ВЫВОДЫ

1. Собраны и проанализированы архивные результаты измерений УА проб ДО, отобранных с разной глубины ДО и на различных участках р. Течи в 1952, 1954 и 1955 гг.

2. Отмечено, что распределения УА по глубине ДО и по длине р. Течи имеют немонотонный ("пятнистый") характер, причём в

Таблица 5

Значения УА  $A_{\Sigma}$  и  $M_{\Sigma}$  по состоянию на 01.11.1951 г. (с расчётной поправкой на распад  $^{95}\text{Zr}$ ) для проб, отобранных с разной глубины ДО МП (лето 1955 г.)

Слой ДО, см	$A_{\Sigma}$ , мкКи/кг (1955 г.)	$M_{\Sigma}$ , мкг-экв. Ра/кг (1955 г.)	$M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$ , мкг-экв.Ра/мкКи (1955 г.)	$M_{\Sigma}$ , мкг-экв.Ра/кг (01.11.1951 г.)
5	0,6	2,6	4,3	19000
10	0,7	4,0	5,7	29200
10	0,32	1,2	3,8	8800
10	0,30	1,4	4,7	10200

ряде случаев максимум УА регистрируется на глубинах до 15–20 см и на расстоянии более 100 км от точки сброса ЖРО, что исключает главенствующую роль диффузионного и сорбционно-десорбционного процессов при миграции радионуклидов.

3. Рассмотрены особенности существовавших в 1950-х гг. методов измерений УА суммы  $\beta$ -излучающих нуклидов (БИН),  $A_{\Sigma}$  (мкКи/кг), и суммы  $\gamma$ -излучающих нуклидов (ГИН),  $M_{\Sigma}$  (мкг-экв. Ра/кг).

4. Показано, что значение отношения  $R_{\Sigma} = M_{\Sigma}/A_{\Sigma}$  можно использовать в качестве специфического критерия, который позволяет получать новую информацию о содержании  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$  в ДО.

5. С использованием предложенного критерия из всей совокупности архивных данных отобраны такие пробы ДО, у которых сумма УА  $^{95}\text{Zr}$  ( $M_{\text{Zr}}$ ) и  $^{95}\text{Nb}$  ( $M_{\text{Nb}}$ ) гарантированно сопоставима с суммарной активностью ( $M_{\Sigma} \approx M_{\text{Zr}} + M_{\text{Nb}}$ ), что позволяет провести перерасчёт этих первичных результатов с учётом радиоактивного распада на любой заданный момент времени.

6. Показано, что отобранные по критерию результаты измерений  $M_{\Sigma}$ , выполненные в 1952, 1954 и 1955 гг. и приведённые с учётом радиоактивного распада на 01.11.1951 г., оказались близки между собой (в пределах порядка величины), хотя различия исходных значений достигало ~10 млн раз.

7. Показано, что распределение УА  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$  в ДО по длине реки по состоянию на ноябрь 1951 г. (сразу после "промывки" Кокшаровского и Метлинского прудов-отстойников и после снижения мощности сброса ЖРО на 2-3 порядка величины) оставалось практически постоянным (в пределах общего "пятнистого" характера) на протяжении всей реки.

8. Ещё раз подтверждены выводы о том, что крупномасштабное загрязнение р. Течи (на всём её протяжении) сформировалось в период с июля по октябрь 1951 г., когда расход воды через плотину П-4 был увеличен до ~8 м<sup>3</sup>/с, и в период "промывки" Кокшаровского и Метлинского прудов (17–22 октября 1951 г.).

9. Полученные результаты позволяют поновому подойти к задаче реконструкции дозы внешнего облучения жителей р. Течи.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Мокров Ю.Г. Изучение параметров источника гамма-излучения в районе Метлинского пруда на реке Тече. Часть 2. Обоснование радионуклидного состава источника // Вопросы радиац. безопасности. – 2022. – № 4. – С. 40–58.
2. Мокров Ю.Г. Поведение ниобия-95 в водах реки Течи // Вопросы радиац. безопасности. – 2023. – № 2. – С. 33–46.
3. Ильин Д.И. Миграция радиоактивных веществ из открытых водоёмов: Дисс. д-ра техн. наук / Архив ПО "Маяк", 1956. – 270 с. – Опубликовано в: // Вопросы радиац. безопасности. – 2004. – № 4. – С. 46–59; Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 1. – С. 60–77; Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 2. – С. 50–75; Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 3. – С. 48–66; Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 4. – С. 28–39.
4. Хай Д.М. Идентификация элементов и количественное определение примесей методом поглощения бета-излучения: Отчёт / Архив ПО "Маяк", Озёрск, 1952. – 44 с.
5. ОСТ 95.600-78. Вещества радиоактивные. Метод определения состава радионуклидов в источниках бета-излучения измерением поглощения излучения в алюминиевых фильтрах.
6. Booth R.S. A systems analysis model for calculation radionuclide transport between receiving waters and bottom sediments In: // Miller M.W.; Stannard J.N., eds. Environmental toxicity of aquatic radionuclides: Models and Mechanisms, Ann Arbor, MI: Ann Arbor Science. – 1976. – P. 133–164.
7. Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine releases. Exposure of critical groups // Safety Series No. 57. Procedure and Data. Vienna: IAEA, 1982.
8. Общие положения безопасности АЭС. Методы расчёта распределения радиоактивных веществ с АЭС и облучение окружающего населения. Нормативно-технический документ стран-членов СЭВ и СФРЮ 38.220.56–84. – М.: Энергоатомиздат, 1984.
9. Мокров Ю.Г. Реконструкция и прогноз радиоактивного загрязнения реки Течи. Часть I. Роль взвешенных частиц в процессе формирования радиоактивного загрязнения реки Течи

- в 1949–1951 гг. // Биб-ка журнала "Вопросы радиац. безопасности". № 1. – Озёрск, 2002. – 176 с.; Часть II. Реконструкция радиационной обстановки и оценка доз облучения населения прибрежных районов реки Течи за период 1949–1954 гг. // Биб-ка журнала "Вопросы радиац. безопасности". № 2. – Озёрск, 2003. – 143 с.
10. Mokrov Yu.G. Reconstruction of the radionuclide spectrum of liquid radioactive waste released into the Techa river in 1949–1951 // *Radiation and Environmental Biophysics*. – 2003. – V. 42. – P. 7–15.
  11. Гусев Н.Г., Беляев В.А. Справочник: Радиоактивные выбросы в биосфере. – М.: Энергоатомиздат, 1986.
  12. Sources and Effects of Ionizing Radiation, UNSCEAR 2000, Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, v. 1: Sources United Nations, New York, 2000.
  13. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г., Ровный С.И., Лыжков А.В., Анспо Л.Р., Напье Б.А. Методика реконструкции радионуклидного состава и активности осколков деления, накапливающихся в облучённом уране на момент его радиохимической переработки на заводе "Б" ПО "Маяк" в начале 1950-х гг. // *Вопросы радиац. безопасности*. – 2008. – Спецвыпуск. – С. 35–51.
  14. Марей А.Н., Ильин Д.И., Кардеева А.А., Лукачер Г.Я., Липеровская Е.С., Дяченко В.Н., Губин В.А., Истомина А.Г., Меркулова Т.Н., Корзухина И.А., Голубитская Н.Н., Горелов И.И. Влияние промышленных стоков завода им. Д.И. Менделеева, сбрасываемых в реку Течу, на санитарные условия жизни и здоровье населения прибрежных пунктов: Отчёт / ЦНИЛ, ИБФ, Институт гигиены труда АМН СССР; Архив ФГУП "ПО "Маяк". – Оpubл. в // *Вопросы радиац. безопасности*. – 2009. – № 2. – С. 55–71.
  15. Мокров Ю.Г., Шагин Д.М. Исследование процесса взмучивания донных отложений и осаждения взвесей на верхнем участке реки Течи в 1949–1951 гг. // *Вопросы радиац. безопасности*. – 2002. – № 4. – С. 22–34.
  16. Mokrov Y.G. Radioactive contamination in the upper part of the Techa river: stirring-up of bottom sediments and precipitation of suspended particles. Analysis of the data obtained in 1949–1951 // *Radiation and Environmental Biophysics*. – 2004. – V. 42. – P. 285–293.
  17. HEC-6. Scour and deposition in rivers and reservoirs, user's manual, U.S. Army Corps of Engineers, Hydrologic Engineering Center, 1993.
  18. Об измерениях загрязнённости инертными продуктами территории, прилегающей к ГХЗ им. Менделеева, за 2 кв. 1952 г.: Отчёт / ЦНИЛ – Ильин Д.И., Степанова Л.Г. Архив ФГУП "ПО "Маяк", Озёрск, 1952. – 32 л.
  19. Загрязнённость радиоактивными продуктами водоёмов и территории, прилегающей к ГХЗ им. Менделеева (II полугодие 1954 г.): Отчёт / ЦНИЛ – Ильин Д.И., Колубакин А.Ф., Орлова К.Н. Архив ФГУП "ПО "Маяк", Озёрск, 1955. – 81 л.
  20. О загрязнённости радиоактивными продуктами водоёмов и территории, прилегающей к Государственному ордену Ленина химическому заводу им. Менделеева: Отчёт за 2 полугодие 1955 года / ЦНИЛ – Ильин Д.И., Киселев Я.П., Петрова А.И. Архив ФГУП "ПО "Маяк", Озёрск, 1956. – 80 л.
  21. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г., Ровный С.И., Стукалов П.М., Иванов И.А., Алексахин А.И., Воробьева М.И., Дегтева М.О., Аклеев А.В. Восстановление параметров источника сбросов жидких радиоактивных отходов радиохимического производства в реку Течу. Сообщение 1. Разработка методики и основные результаты // *Вопросы радиац. безопасности*. – 2008. – Спецвыпуск. – С. 76–91.

УДК 621.039.76

© 2023

## РАДИОАКТИВНОЕ ЗАГРЯЗНЕНИЕ ПРИБРЕЖНЫХ УЧАСТКОВ В РЕЗУЛЬТАТЕ УНОСА ВОДНОГО АЭРОЗОЛЯ С АКВАТОРИИ РЕКИ ТЕЧИ

**Ю.Г. Мокров**

*Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Работа направлена на реконструкцию параметров источника загрязнения р. Течи (1949–1956 гг.) и посвящена изучению миграции  $\gamma$ -излучающих нуклидов (ГИН), конкретно циркония-95 ( $^{95}\text{Zr}$ ) и ниобия-95 ( $^{95}\text{Nb}$ ), в речной системе. Рассмотрены архивные (1951 г.) результаты измерения удельной активности (УА) суммы  $\beta$ -излучающих нуклидов (БИН) –  $A_z$  (мкКи/кг) почвы и растительности в прибрежных районах р. Течи, не подверженных затоплению паводковыми водами. Показано, что радиоактивное загрязнение прибрежных территорий не связано с атмосферными выбросами из труб предприятия, а результаты измерений не соответствуют общепринятым представлениям о характере распределения загрязнения, в частности:

- загрязнение прибрежной почвы и растительности при удалении от береговой полосы и по длине реки носит немонотонный (пятнистый) характер, а абсолютные значения УА БИН в пределах порядка величины постоянны на всей территории;
- распределение УА БИН по глубине почвы в слое до 0,5 м имело практически равномерный характер, а в ряде случаев возрастало с глубиной;
- растительность имела как внешнее (листовое), так и внутреннее (корневое) загрязнение, причём в ряде случаев УА БИН стеблей и листьев была меньше, чем корней.

Выдвинуто предположение, что радиоактивное загрязнение почвы и растительности обусловлено  $^{95}\text{Nb}$  и произошло в результате ветрового уноса водного аэрозоля с акватории реки. Выполненные модельные расчёты позволили объяснить необычный характер всех распределений и оценить верхнюю границу среднего (за летний период 1951 г.) значения объёмной активности (ОА)  $^{95}\text{Nb}$  в воде реки.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** РЕКА ТЕЧА, ПРИБРЕЖНЫЕ РАЙОНЫ, ВОДНЫЙ АЭРОЗОЛЬ, НИОБИЙ-95, ЦИРКОНИЙ-95, ЗАГРЯЗНЕНИЕ ПОЧВЫ И РАСТИТЕЛЬНОСТИ, КОЭФФИЦИЕНТ ПОГЛОЩЕНИЯ БЕТА-ИЗЛУЧЕНИЯ, СОРБЦИОННАЯ СПОСОБНОСТЬ

### ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Данная работа является продолжением исследований [1–3] по изучению особенностей поведения  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  в воде и донных отложениях (ДО) речной системы и направлена на совершенствование ретроспективных методов дозиметрии населения, проживавшего в 1950-х гг. на р. Тече. Все результаты работ [1–6] показывают, что в 1950–1952 гг. вклад радионуклидов  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  в суммарную активность регламентных жидких радиоактивных отходов (ЖРО) [5] и в общую активность, содержащуюся (накопленную) в речной системе р. Течи, был преобладающим, и они играли знаковую роль в

формировании внутреннего и внешнего облучения населения [6]. В архивных документах сведения о содержании радионуклидов  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  в компонентах речной системы носят отрывочный характер, а литературные данные [7–12] о сорбционных свойствах и поведении этих нуклидов в водных объектах характеризуются противоречивостью. Указанные обстоятельства обусловлены комплексом объективных и субъективных причин, связанных с особыми физико-химическими свойствами этих радионуклидов:

1. Кумулятивный выход осколочных радионуклидов  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  при делении  $^{235}\text{U}$  на тепловых нейтронах ( $\sim 0,0656$ ) близок к максимальному значению, что предопределяет



высокую скорость накопления их в облучённом уране. При характерной в 1949–1952 гг. длительности облучения урана в реакторе (менее 150 сут) и времени выдержки облучённого урана до радиохимической переработки (30–60 сут) вклад активности  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  в суммарную активность всех осколков деления в обрабатываемых ЖРО становится преобладающим (более 35 %) [5–6].

2. В ЖРО, сбрасываемых в р. Течу,  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  находились в растворённом виде (~40 %) и в виде нерастворимых в воде мелкодисперсных осадков солей (~60 %), активность которых составляла от 40 до 90 % от общей активности ЖРО [13, 14].

3. Чрезвычайно высокие сорбционные свойства  $^{95}\text{Zr}$  (коэффициент распределения  $K_d=61 \text{ м}^3/\text{кг}$ ) [7–9] приводят к тому, что он прочно и практически необратимо сорбируется на взвешях и ДО непосредственно в точке сброса ЖРО. Дальнейший перенос  $^{95}\text{Zr}$  в речной системе возможен только с твёрдым стоком (на взвешенных и донных наносах), который определялся гидрологическим режимом водного стока [3–4]. До июля 1951 г., когда расход воды на верхнем участке реки не превышал  $1 \text{ м}^3/\text{с}$ , практически все техногенные и природные взвеси осаждались и накапливались на самом верхнем участке реки (в районе точки сброса ЖРО) или на дне Метлинского пруда (МП), а ниже плотины МП могла поступать только небольшая часть глинистых частиц. С июня по октябрь 1951 г. расход воды возрос до  $8 \text{ м}^3/\text{с}$ , а в период с 17 по 22 октября 1951 г. была осуществлена "промывка" КП и МП с расходом около  $30 \text{ м}^3/\text{с}$ . Вместе с водой в речную систему поступило большое количество взмученных ДО, загрязнённых радионуклидами [13, 14]. Таким образом, до июня 1951 г. подавляющая часть (более 95 %) сбрасываемого в реку  $^{95}\text{Zr}$  накапливалась на верхнем участке реки вблизи точки сброса ЖРО (в процессе сорбции ДО или в результате осаждения загрязнённых осадков солей). Масштабное загрязнение ДО и поймы на всём протяжении реки  $^{95}\text{Zr}$  и другими ГИН с высокими сорбционными свойствами ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{141,144}\text{Ce}$ ,  $^{103,106}\text{Ru}$  и др.) могло произойти только в период с июня по октябрь 1951 года [4].

4. Аномально низкие сорбционные свойства  $^{95}\text{Nb}$  ( $K_d=0,091 \text{ м}^3/\text{кг}$ ) [7–9] predispose

перенос  $^{95}\text{Nb}$  преимущественно в растворимом виде [2]. Поэтому  $^{95}\text{Nb}$  легко перемещался по речной системе на значительные расстояния без заметной сорбции на ДО. При этом  $^{95}\text{Nb}$  поступал в воды реки как непосредственно со сбросами ЖРО (внешний источник), так и при выходе из ДО после распада материнского  $^{95}\text{Zr}$  (внутренний источник) [2–3]. До октября 1951 г. поступление  $^{95}\text{Nb}$  в речную систему могло быть обусловлено как внешним, так и внутренним источником. После промывки прудов, когда сбросы ЖРО в реку сократились на 2–3 порядка величины, основным источником поступления  $^{95}\text{Nb}$  в водную фазу стал внутренний источник. Мощность этого источника снижалась во времени по экспоненциальному закону радиоактивного распада  $^{95}\text{Zr}$  [2]. В 1952 г. значения УА  $^{95}\text{Nb}$  в воде Кокшаровского пруда (1,5 км от точки сброса ЖРО), в с. Метлино (7 км) и в п. Надыров мост (42 км) практически совпадали, что подтверждает аномально высокую миграционную (низкую сорбционную) способность  $^{95}\text{Nb}$  [2].

5. В 1950–1970 гг. при изучении закономерностей миграции осколочных нуклидов в водных системах и накопления их в почве, ДО и в биоте было принято использовать обозначение  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ , поскольку в тот период времени ещё не существовало надёжных и доступных аналитических методов раздельного определения активности  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  по следующим причинам:

- радиохимические методы разделения  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  были чрезвычайно трудоёмки и длительны, что не позволяло широко использовать их в рамках массового радиационного контроля и мониторинга [13];

- радиационные характеристики  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  близки между собой как по удельной (на единичную активность) мощности внешней дозы, так и по спектрам  $\gamma$ -излучения, что не позволяло надёжно разделять эти нуклиды существовавшими в то время методами радиометрии и/или сцинтилляционной гамма-спектрометрии;

- изотопы  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  обладают низкой средней энергией  $\beta$ -частиц (~120 кэВ для  $^{95}\text{Zr}$  и ~45 кэВ для  $^{95}\text{Nb}$ ), что приводило к существенному искажению (занижению до 10 раз) результатов при измерении активности



$\beta$ -излучающих нуклидов (БИН) на торцевом счётчике (в тот период основным методом определения активности БИН) [13–16].

К сожалению, в период после 1980-х гг., когда в практике аналитических лабораторий стали доступны современные полупроводниковые детекторы с высоким энергетическим разрешением, масштабные работы по изучению миграции  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  в водных системах не проводились. В результате, в современной справочной литературе остались только результаты исследований, выполненных в 1950–1970-х гг., где значения сорбционных характеристик для  $^{95}\text{Nb}$  рекомендуется использовать такие же, как для  $^{95}\text{Zr}$  (или для суммы  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ ) [17–18].

Целью данной работы является изучение архивных (1951 г.) результатов измерений параметров загрязнения почвы и растительности в прибрежных районах р. Течи, не подверженных затоплению паводковыми водами, выявление механизма загрязнения и получение на этой основе дополнительной информации об источнике поступления и распределении  $^{95}\text{Zr}$  и  $^{95}\text{Nb}$  в речной системе.

## ХАРАКТЕРИСТИКА ПРИБРЕЖНЫХ РАЙОНОВ Р. ТЕЧИ

Контроль загрязнения р. Течи (вода, почва, растительность и др.) проводился начиная с середины 1951 г. в специальных точках контроля (ТК) [13–14].

Следует различать три характерных участка р. Течи:

- верхний участок реки длиной 6 км, расположенный от плотины П-2 (ТК-20) до плотины П-4 (ТК-21) и включающий Кокшаровский и Метлинский пруды;
- средний участок р. Течи длиной ~75 км, распространяющийся от ТК-21 до ТК-34 (с. Муслумово) и характеризующийся наличием широкой (до 2 км) заливной поймы;
- нижний участок р. Течи длиной около 140 км, расположенный от ТК-34 до устья (ТК-48), где заливная пойма выражена слабо или отсутствует.

На верхнем участке (см. рисунок) река Теча протекает по широкой и неглубокой ложине шириной 0,4–0,6 км. Правый берег

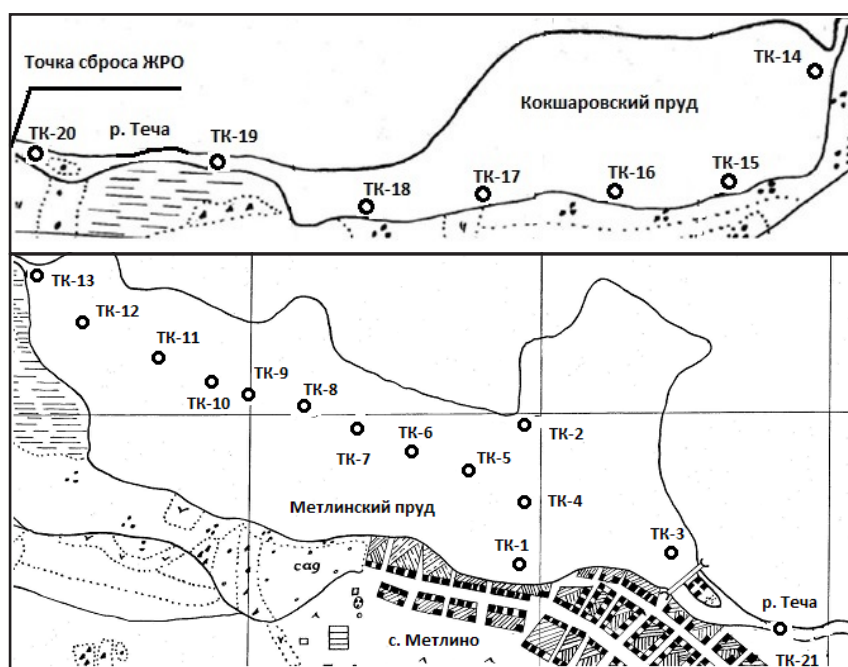


Рисунок. Схема расположения точек контроля (ТК) загрязнения воды, почвы и растительности на верхнем участке р. Течи (1951–1955 гг.)

реки большей частью обрывистый, высотой до трёх метров, занят посевами сельскохозяйственных культур (клевер, подсолнух). Почва – чернозём. На расстоянии 150–200 м от берега начинаются щебенчатые почвы, покрытые листовым лесом. Левый берег низкий и на всём протяжении заболочен. Почвенный покров представлен болотными и луговыми почвами. Луговые почвы используются под сенокос. Участок в ТК-14 представлял собой заливной луг, а в ТК-18 – обрывистый берег высотой до 3 м. После постройки (11.08.1951) около ТК-14 плотины П-3 уровень воды в реке поднялся на 1,5 м и таким образом образовался КП с площадью примерно 0,5 км<sup>2</sup>. Низкие места правого берега (вблизи ТК-14 и ТК-15) и большая часть левого берега на значительном протяжении были затоплены. Из КП вода стекает по р. Тече в МП, площадь которого равна ~2 км<sup>2</sup>.

На среднем участке (от точки контроля ТК-21 до точки ТК-34) р. Теча протекает по торфяному болоту, заросшему камышом и осокой. Местами в этой части поймы имеются небольшие возвышения – островки, покрытые луговыми травами. Ширина поймы на этом участке колеблется от нескольких десятков метров до 2-3 км (точки ТК-24 и ТК-32). Во время весеннего половодья вся пойма указанных участков реки покрывается водой. Загрязнение почвы и растительности на этом участке обусловлено сорбцией радионуклидов из речной воды и/или осаждением взвесей и определяется УА воды и продолжительностью затопления поймы.

От Муслумово и до впадения в р. Исеть Теча течёт в скалистых берегах с общим направлением на северо-восток. Длина р. Течи равна 206 км, а ширина русла на всём протяжении 10–15 м.

#### ЗАГРЯЗНЕНИЕ ПОЧВЫ И ПРИБРЕЖНОЙ РАСТИТЕЛЬНОСТИ

##### *Отбор проб почвы*

Первое комплексное радиационное обследование р. Течи проведено с августа по декабрь 1951 г. специалистами биофизического отдела ЦЗЛ завода 817 (ныне ФГУП "ПО "Маяк")

[19]. Представлены результаты определения удельной активности (УА) суммы БИН для почвы и растительности в прибрежных районах р. Течи. Наиболее подробно исследованы почва и растения на верхнем участке реки Течи от места сброса вод промышленной канализации (точка контроля ТК-20) до плотины с. Метлино (ТК-21). Все эти точки расположены на правом берегу реки. Расстояние между пунктами контроля 200–250 м (табл. 1).

Пробы почвы до создания КП были отобраны в начале августа, после длительного периода сухой погоды, а повторный отбор проб почвы (после образования КП) проведён в сентябре, после многократных и обильных дождей. Глубина отбора не превышала 5-6 см [19].

В табл. 2 приведены результаты определения УА почвы на различной глубине.

Анализ данных табл. 1 и 2 позволяет отметить:

– на верхнем участке реки, соответствующем положению КП, УА поверхностного слоя почвы остаётся практически постоянной при удалении от берега на расстояние до 160 м, а в ряде случаев даже возрастает;

– на всём протяжении реки распределение УА почвы по глубине (0–50 см) имеет практически постоянный вид, а в ряде случаев даже возрастает с глубиной.

Таблица 1

Удельная активность поверхностного слоя почвы на различном расстоянии от берега до (06.08.1951) и после (15.09.1951) образования КП, мкКи/кг [19, 20]

Место отбора проб	До образования КП	После образования КП				
	Расстояние от берега, м					
	0,5–2	40	110	10	60	160
ТК-14	3850 (ил) 116 (глина)	1,4	–	0,43	0,25	0,22
ТК-15	204	13	3,8	–	–	–
ТК-16	–	2,0	0,4	–	–	–
ТК-17	40	1,1	1,6	–	–	–
ТК-18	5,7	0,6	2,3	0,55	0,28	0,21

Таблица 2

**Отбор проб прибрежной растительности**

Удельная активность почвы в зависимости от глубины отбора проб после образования КП (15.09.1951), мкКи/кг [19, 20]

ТК (расстояние от П-2, км)	Расстояние от берега, м	Глубина отбора проб, см				Среднее по глубине
		0	10	25	50	
ТК-20 (0,30)	30	0,07	—	0,12	0,15	0,11
	120	0,24	—	0,17	0,64	0,35
	170	0,09	—	0,39	0,75	0,41
ТК-18 (1,5)	10	0,55	—	0,43	0,05	0,34
	60	0,28	—	0,15	0,59	0,34
	160	0,21	—	0,41	0,26	0,29
ТК-17 (2,0)	10	0,17	0,01	0,06	—	—
	60	0,07	0,08	0,07	—	—
ТК-14 (3,5)	10	0,43	—	0,21	0,03	0,22
	60	0,25	—	0,10	0,14	0,16
	160	0,22	—	0,05	0,44	0,24
ТК-24 <sup>(1)</sup> (18)	10	0,26	—	0,14	0,10	0,17
	70	0,09	—	0,10	0,09	0,093
ТК-28 (36)	10	0,10	—	0	—	0,10
	50	0,03	—	0,03	0,02	0,027
— (66)	10	5,73 <sup>(2)</sup>	0,28	—	0,22	2,1
	50	2,72 <sup>(2)</sup>	0,06	—	0,09	0,96
ТК-35 (86)	10	11,0 <sup>(2)</sup>	1,89	0,22	—	4,4
	50	—	0,23	—	0,12	0,18
— (116)	10	—	0,19	—	0,07	0,13
	30	—	0,23	—	0,49	0,36
— (146)	10	—	0,05	—	0,06	0,05
	50	—	0,03	—	0,02	0,025
ТК-45 (176)	10	—	0,04	—	0,62	0,33
	50	—	0	—	0	0
ТК-48 (206)	10	—	0,27	—	0,38	0,33
	50	—	0,20	—	0,17	0,19

Примечание: <sup>(1)</sup> — Почва на огороде; <sup>(2)</sup> — Загрязнение связано с антропогенным разном берегового ила.

В 1951 г. пробы растительности на верхнем участке р. Течи отбирались в тех же местах и в то же время, что и пробы почвы (табл. 1 и 2). Результаты измерений УА этих проб, представленные в табл. 3 и 4, показывают:

— максимальные значения УА растений наблюдаются на береговой полосе и обусловлены загрязнением воды реки;

— по мере удаления от берега, на всём протяжении КП, значения УА растений оставались практически неизменными или даже возрастали.

Данные табл. 4 показывают, что в большинстве случаев УА корней трав больше, чем листьев и поверхностного слоя почвы.

Авторы работ [13, 19, 20], анализируя авторадииограммы растений, отмечают:

— на верхнем участке реки "...авторадииограммы прибрежной растительности показывают, что на листьях и стеблях её имеются следы внешней загрязнённости. Ясно видна также структурная загрязнённость травы, поступившая в неё вместе с питательными соками из земли";

— на среднем участке реки "...на всей заливной площади поймы р. Течи растительность имеет структурную загрязнённость активными продуктами, а дальше с обеих сторон поймы тянется узкая полоса с растительностью, загрязнённой преимущественно активными продуктами, попавшими на неё в виде аэрозолей и пыли".

Для изучения влияния атмосферных выбросов на радиоактивное загрязнение территории вблизи радиохимического завода (РХЗ) в августе 1951 г. отобраны пробы растительности и почвы на различном расстоянии от РХЗ в юго-восточном направлении. В табл. 5 для сравнения (в качестве "фоновых" для прибрежных районов р. Течи) приведены результаты измерений УА проб растительности и слоёв почвы на разной (0–50 см) глубине. Поверхностный слой почвы (0 см) соответствовал глубине отбора около 2 см.

Результаты работы [20] и данные табл. 5 позволяют заключить:

— на всей территории, прилегающей к РХЗ (на расстоянии от 1 до 10 км), УА растительности и поверхностного слоя почвы не превышает 2 мкКи/кг;

Таблица 3

Удельная активность (УА) проб растительности, отобранных с правого берега Кокшаровского пруда в штатных точках контроля (ТК), удалённых на различное расстояние (У) от берега р. Течи (15.09.1951) [19, 20]

ТК	У, м	Растения	УА, мкКи/кг
ТК-14	0	Осока	600
	0	Тимофеевка	5,4
	0	Лапчатка гус.	3,0
	40	Сено	4,0
	40	Поповник	3,0
ТК-15	0	Осока	50
	0	Осот желтый	1,1
	40	Сено	0,2
	40	Клевер	0,6
	120	Сено	2,7
	120	Овес дикий	0,4
ТК-16	0	Сено	3,9
	0	Смесь трав	7,3
	40	Сено	0,2
	40	Клевер	0,5
	120	Клевер	8,1
	120	Овес дикий	6,0
ТК-18	0	Камыш	512
	0	Осока	36
	40	Клевер	1,0
	120	Клевер	2,6
	120	Смесь трав	5,7
ТК-17	0	Сено	517
	0	Костер безост.	960
	0	Осот розовый	2250
	40	Сено	2,5
	40	Клевер	1,3
	40	Клевер	8,4
	120	Конопля	3,2
ТК-20	0	Листья ивы	436
	40	Тысячелистник	1,4

– загрязнение почвы на глубине более 2 см не зафиксировано (меньше предела обнаружения);

– УА корней растений более чем в 300 раз меньше, чем УА наземных частей растений.

Анализ результатов работ [19, 20] и представленные в табл. 1–5 данные позволяют сделать следующие промежуточные выводы:

– в 1951 г. распределения радиоактивного загрязнения (УА) растений и почвы на прибрежных территориях верхнего участка р. Течи имели одинаковый характер (подобный вид), но не соответствуют общепринятым представлениям;

– радиоактивное загрязнение растений имело комплексный характер и было обусловлено как поверхностным (аэрозольным), так и корневым (структурным) загрязнением;

– аэрозольное загрязнение прибрежной растительности (и почвы) не может быть связано с атмосферными выбросами РХЗ (табл. 2 и 5), а обусловлено переносом (воздействием) радионуклидов с акватории реки;

–  $\beta$ -излучающие нуклиды, содержащиеся в/на растительности и в почве, должны обладать аномально низкой сорбционной способностью (проникать в почву на глубину более 50 см без заметного изменения УА), хорошо усваиваться корневой системой растений из почвы (табл. 4); период полураспада таких БИН должен быть сопоставим с длительностью вегетационного периода (не менее 2-3 недель); содержание (УА) таких БИН в речной воде должно быть достаточно большим.

Анализ сорбционных (миграционных) [7–9] и радиационных характеристик всех БИН осколочного и активационного происхождения [1–3] позволяет предположить, что всем вышеперечисленным свойствам может удовлетворять только один радионуклид –  $^{95}\text{Nb}$ . Обоснование этой гипотезы будет приведено ниже в разделе "Обсуждение". Проверим эту гипотезу и оценим параметры источника уноса БИН ( $^{95}\text{Nb}$ ) с акватории р. Течи в 1951 г.

#### МЕТОДИКА ОЦЕНКИ ПАРАМЕТРОВ ИСТОЧНИКА АЭРОЗОЛЬНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ

Известно, что в результате различных физических и химико-биологических процессов

Таблица 4

Удельная активность (УА) проб почвы и различных частей растений, отобранных с берегов Кокшаровского и Метлинского прудов в 1951 г. в штатных точках контроля (ТК), удалённых на различное расстояние  $Y$  (м) от берега р. Течи [19, 20]

Место отбора проб	У, м	Вид растительности	УА частей растений		УА почвы с корней, мкКи/кг
			Стебли и листья	Корни	
Пробы отобраны 06 августа 1951 г.					
ТК-16	120	Клевер	2,5	42	2,4
ТК-18	40	Клевер	1,0	0,8	0,6
Пробы отобраны 15 сентября 1951 г.					
ТК-15	40	Клевер	0,1	0,8	13
ТК-16	40	Клевер	0,1	0,9	2
ТК-17	40	Клевер	2,4	6,1	1,1
ТК-18	40	Клевер	0,23	1,8	0,3
ТК-14	40	Лапчатка гусиная	3,8	0,4	0,43
ТК-14	40	Поповник	0,7	4,9	1,4
ТК-15	120	Овес дикий	0,2	0,6	0,8
ТК-16	120	Овес дикий	0,3	10,9	0,4
ТК-18	120	Смесь трав	4,7	13,5	2,3
ТК-20	40	Тысячелистник	1,6	1,0	0,4

Таблица 5

Удельная активность (УА) проб растений и почвы (на глубине 0–50 см), отобранных в августе 1951 г. на различном (1–10 км) расстоянии от радиохимического завода в юго-восточном направлении, мкКи/кг [20]

Расстояние от РХЗ, км	УА растений	УА почвы на разной глубине			
		0 см	5 см	25 см	50 см
1,0	1,8	0,8	0	0	0
2,0	1,16	0,5	0	0	0
2,5	0,66	0,1	0	0	0
5,0	0,9	1,68	–	–	–
10,0	1,3	–	–	–	–

над открытой поверхностью водных объектов (реки, озёра, моря) образуется водный аэрозоль (в виде мельчайших капель воды), который может переноситься ветром на значительные расстояния. В ряде случаев, когда вода водных объектов сильно загрязнена химическими или радиоактивными веществами, поверхность

водоёма может являться заметным источником загрязнения атмосферы и прилегающих территорий. Основные положения методики расчёта атмосферных выпадений, обусловленных ветровым уносом водного аэрозоля с акватории водоёма, в приближении поверхностного источника приведены в работах [21–23]. Использована стандартная Гауссова модель атмосферной диффузии [24] для расчёта загрязнения атмосферы выбросами водного аэрозоля от поверхностного наземного источника (водного объекта) произвольной формы на различных расстояниях, в том числе соизмеримых с линейными размерами водоёма. Разработанная модель позволяет оценить плотность загрязнения территории от выбросов из водного объекта за любой период времени на любом расстоянии от водоёма с учётом реальных данных гидрометеорологических наблюдений за состоянием атмосферы (направление и скорость ветра, категория устойчивости атмосферы).

В работе [23] введено понятие коэффициента фракционирования (накопления) –  $\bar{F}(X/C_s)$  радионуклида  $X$  в водном аэрозоле водоёма В-9 (Карачай) по отношению к реперному радио-



нуклиду ( $^{137}\text{Cs}$ ). Оценены значения  $F(X/\text{Cs})$  для следующих радионуклидов: для  $^{90}\text{Sr}$   $F(\text{Sr}/\text{Cs}) \approx 1,0$ ; для  $^{103,106}\text{Ru}$   $F(\text{Ru}/\text{Cs}) \approx 0,5-3$ ; для  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$   $F(\text{Zr}/\text{Cs}) \approx 2-8$ ; для  $^{125}\text{Sb}$   $F(\text{Sb}/\text{Cs}) \approx 1-4$ ; для  $^{144}\text{Ce}$   $F(\text{Ce}/\text{Cs}) \approx 4,5-33$ .

При проведении расчётов загрязнения атмосферы от плоского наземного источника произвольной формы [22, 23] использовалась процедура интегрирования по площади водного объекта  $S$  и по времени  $T$  с шагом  $t_0=3$  ч (периодичность определения метеорологических данных). При этом плоский источник выброса задавался в виде суперпозиции точечных источников одинаковой мощности, расположенных в узлах квадратной сетки с шагом 1 м. В процессе интегрирования для каждого временного шага интегрирования последовательно перебирались все точечные источники, расположенные в узлах сетки, определялся азимутальный угол, под которым "виден" соответствующий пункт контроля (точка детектирования), и, если этот угол соответствовал текущему направлению (румбу) ветра, то проводился расчёт фактора метеорологического разбавления в режиме суммирования.

Расчётное значение суммарного выпадения за период времени  $T$  при "равномерном" (хроническом) воздействии можно представить в виде:

$$A_S^{\text{Calc}}(T) = v \cdot q_w \cdot \bar{C}_w \cdot t_0 \cdot F \cdot \bar{G}_S^{\Sigma}(T) \cdot (1 - \exp(-\lambda \cdot T)) / \lambda, \quad (1)$$

$$\bar{G}_S^{\Sigma}(T) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^S \sum_{i=1}^N G_j, \quad (2)$$

где  $G_j$  – "разовый" фактор метеорологического разбавления в момент времени  $t_j = j \cdot t_0$  (рассчитывается как среднее значение для заданного румба по измеренным "разовым" значениям метеорологических параметров),  $\text{с}/\text{м}^3$ ;

$\bar{G}_S^{\Sigma}(T)$  – среднее значение суммарного (по всем точкам источника и за период времени  $T$ ) коэффициента метеорологического разбавления,  $\text{с}/\text{м}^3$ ;

$q_w$  – средняя скорость уноса объёма воды в виде водного аэрозоля с одного квадратного метра акватории водного объекта в летний период времени для реперного радионуклида  $^{137}\text{Cs}$ , принята равной  $q_w \approx 1,3 \cdot 10^{-9} \text{ л}/(\text{с} \cdot \text{м}^2)$  [23];

$v$  – скорость "сухого" осаждения аэрозоля на поверхность почвы,  $\text{м}/\text{с}$  (принята равной  $v=0,01 \text{ м}/\text{с}$ );

$\bar{C}_w(T)$  – среднее (за период времени  $T$ ) значение УА рассматриваемого нуклида ( $^{95}\text{Nb}$ ) в воде водного объекта,  $\text{Бк}/\text{л}$ ;

$F=F(\text{Zr}/\text{Cs})=5$  – коэффициент фракционирования  $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$  по отношению к реперному радионуклиду  $^{137}\text{Cs}$ ;

$N$  – число метеорологических измерений за время  $T$  ( $T = N \cdot t_0$ );

$t_0$  – промежуток времени между метеорологическими измерениями (3 ч);

$\lambda$  – постоянная распада  $^{95}\text{Nb}$ ,  $\lambda=2,3 \cdot 10^{-7} \text{ с}^{-1}$ .

## РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Предложенная модель использована для оценки поперечного (перпендикулярно направлению русла реки) распределения УА почвы и/или растительности при следующих предположениях:

– река представлена в виде прямоугольника шириной 10 м и длиной 800 м (с координатами от -400 до +400 м) и в направлении запад – восток (по оси абсцисс  $X$ );

– расчёты выполнены для правого берега в направлении на юг (по оси  $Y$  из точки  $x=0$ );

– использован файл наблюдений метеостанции ФГУП "ПО "Маяк" за 1951 г. (измерения выполнялись каждые 3 ч 8 раз в сутки).

В табл. 6 приведены результаты расчётов среднего значения суммарного (за месяц) коэффициента метеорологического разбавления  $\bar{G}_S^{\Sigma}(T)$ , выполненных для "летнего" периода времени с мая по сентябрь (период вегетации) в направлении оси ОУ в точках с координатами: 2, 20, 100, 200, 300 и 400 м. Следует отметить, что при проведении расчётов не учитывалось влияние рельефа местности и загрязнение прибрежных территорий в штилевой период. В работах [22, 23] отмечалось, что вблизи поверхностных источников атмосферных выбросов влияние рельефа местности и штилевых условий на загрязнение прибрежных территорий может быть очень существенным.

Уравнения (1)-(2) и данные табл. 6 позволяют оценить некоторые параметры источника радиоактивного загрязнения р. Течи в летний период 1951 г. Среднее экспериментальное

Таблица 6

Расчётные значения суммарного (за месяц) коэффициента метеорологического разбавления  $\bar{G}_S^Z(T)$ , с/м<sup>3</sup>, для модели р. Течи, представленной в виде прямоугольника шириной 10 м и длиной 800 м (от -400 до +400 м) для точек, расположенных по оси ОУ и удалённых от берега на расстоянии Y (м)

Y, м	Месяц 1951 года				
	Май	Июнь	Июль	Август	Сентябрь
2	4,8	8,3	6,0	9,1	5,8
20	3,2	3,4	3,8	6,6	3,3
100	0,91	0,67	1,2	2,3	0,92
200	0,43	0,33	0,62	1,3	0,46
300	0,27	0,20	0,39	0,77	0,28
400	0,13	0,10	0,20	0,42	0,14

значение суммарной (по состоянию на сентябрь 1951 г.) плотности выпадения суммы БИН (<sup>95</sup>Nb) на правом берегу реки в районе ТК-18 при Y = 100 м, с учётом накопления в слое почвы (глубиной h = 0,5 м и плотностью η = 2000 кг/м<sup>3</sup>), можно записать:

$$A_S^{Exp}(T) = \bar{C}_m(T) \cdot h \cdot \eta / K_a = 63 \text{ МБк/м}^2, \quad (3)$$

где  $\bar{C}_m(T) = 0,34$  мКи/кг – среднее значение УА почвы в слое 0,5 м (см. табл. 2);

$K_a = 0,20$  – коэффициент, учитывающий поглощение β-частиц при проведении в 1950-х гг. измерений УА <sup>95</sup>Nb в пробах почвы с использованием торцевого счётчика (результаты измерений были занижены в 5–10 раз из-за низкой энергии β-частиц, испускаемых при распаде <sup>95</sup>Nb [2–3, 15–16]).

Уравнение (3) предполагает, что загрязнение почвы на всю глубину произошло в результате проникновения <sup>95</sup>Nb из поверхностного слоя с атмосферными осадками.

Если значение  $A_S^{Exp}(T)$  подставить в уравнение (1) вместо  $A_S^{Calc}(T)$ , то при  $\bar{G}_S^Z(T) = 2$  с/м<sup>3</sup> (табл. 6), при  $T \rightarrow \infty$  среднее значение УА <sup>95</sup>Nb в воде р. Течи (ТК-18) будет  $\bar{C}_w(T) \approx 10$  МБк/л.

Это значение следует считать максимальной оценкой, поскольку оно получено без учёта загрязнения территории в период штиля и без учёта рельефа местности.

## ОБСУЖДЕНИЕ

Сопоставление всех расчётных и экспериментальных данных позволяет сделать следующие обобщения:

1. В основу использованной выше расчётной модели положено предположение о том, что летом 1951 г. основное радиоактивное загрязнение территории прибрежных районов верхней части р. Течи было обусловлено ветровым уносом водного аэрозоля с акватории реки и осаждением его на почву и растительность. Нуклидный состав водного аэрозоля существенно отличался от состава сбрасываемых ЖРО по следующим причинам:

– в результате процесса фракционирования обогащение водного аэрозоля различными РН происходило в разной степени [23];

– загрязнение воды <sup>95</sup>Nb в верховье р. Течи было обусловлено не только первичными РН, содержащимися в составе сбрасываемых ЖРО (внешний источник), но и, главным образом, вторичными РН, образующимися в результате распада <sup>95</sup>Zr, накопленного в ДО (внутренний источник) [2].

2. При радиоактивных атмосферных выпадениях первоначальное загрязнение растительности (внекорневой путь) происходит в результате осаждения РН на поверхность растений (листья, стебли). Значение коэффициента первоначального удержания выпадений r обычно записывают в виде [25]:

$$r = 1 - \exp(-\alpha \cdot B), \quad (4)$$

где r – часть (доля) активности, которая осажается на поверхности растений, при этом (1 – r) – доля активности, которая осажается на поверхности почвы, б/р;

B – поверхностная плотность сухой биомассы растений, кг/м<sup>2</sup>;

α – константа листовой задержки, обычно α = 3, м<sup>2</sup>/кг [25].

Значение плотности биомассы B для района Южного Урала в конце вегетационного периода (август–сентябрь) рекомендуется принимать B = 0,077 кг/м<sup>2</sup>. Расчёты по уравнению (4) показывают, что первоначально около 20 % выпавшей активности задерживается растительностью, а 80 % осажается на почве.

Сразу же после осаждения РН на поверхность растений начинают действовать механизмы очищения: смыв дождём, сдувание ветром и др. Среднее значение периода полууменьшения очищения составляет ~14 сут [25].

Если принять, что в сентябре 1951 г. УА БИН для растительности (смесь трав) в ТК-18 на расстоянии 120 м от правого берега реки  $A_M^{Exp}(T) = 5,7$  мкКи/кг (см. табл. 3), то значение поверхностной плотности активности БИН на растительности можно оценить как  $A_S^{Exp}(T) = A_M^{Exp}(T) / B = 74$  мкКи/м<sup>2</sup> = 2,7 МБк/м<sup>2</sup>, а суммарное (растения + почва) значение выпадений будет ~14 МБк/м<sup>2</sup>. Это значение после учёта коэффициента ослабления  $K_a = 0,2$  хорошо совпадает с результатом, полученным из уравнения (3).

3. Известно, что распределение радионуклидов в почве между двумя основными фазами – твёрдой и жидкой (почвенной влагой) – характеризуется значением коэффициента распределения  $K_d$ , который во многом и определяет скорость миграции РН в почве. На основании результатов мониторинга загрязнения почвы на территории Восточно-Уральского радиоактивного следа (ВУРС) известно, что средняя скорость нисходящей миграции с атмосферными осадками в слое почвы толщиной 0–15 см (для типичных климатических условий и почв Уральского региона) в первые 15–20 лет после загрязнения составляет 0,3–0,4 см/год для <sup>90</sup>Sr ( $K_d = 2,4$  м<sup>3</sup>/кг) и 0,15–0,3 см/год для <sup>137</sup>Cs ( $K_d = 27,0$  м<sup>3</sup>/кг) [25].

Следует ожидать, что только для <sup>95</sup>Nb, обладающего аномально низкими сорбционными свойствами ( $K_d = 0,091$  м<sup>3</sup>/кг) [7–9], скорость нисходящей миграции в слое почвы будет чрезвычайно высокой (более 50 см за 2–3 месяца).

4. Известно [25], что поступление радионуклидов (РН) в растения из почвы (корневой путь) становится значимым при ослаблении интенсивности внекорневого поступления. На территории ВУРС этот путь стал доминирующим для <sup>90</sup>Sr только через два года после аварии 1957 года [25]. Основным механизмом поступления РН в растения при корневом пути поступления является осмотическое проникновение РН из почвенной влаги через стенки всасывающих корней. Поэтому химические элементы, обладающие низкими значениями

коэффициента распределения  $K_d$  (у которых основная часть активности находится в растворе), как правило, хорошо усваиваются растениями. Следовательно, только для <sup>95</sup>Nb, обладающего аномально низкими сорбционными свойствами ( $K_d = 0,091$  м<sup>3</sup>/кг) [7–9], корневой путь загрязнения растений может быть сопоставим с поверхностным уже в первые несколько месяцев (недель) после начала загрязнения.

5. В июне–августе 1951 г. средний расход воды в верхней части р. Течи составлял  $Q \approx 7$  м<sup>3</sup>/с, средняя мощность сброса технологических ЖРО для суммы всех БИН оценивалась как ~4300 Ки/сут, а вклад цирконий-ниобиевой группы составлял 22 % (950 Ки/сут) [13, 20]. При этих условиях среднее значение УА воды для суммы БИН будет составлять  $\bar{C}_w^{сб\text{ин}}(T) = 7,2$  мкКи/л, что хорошо соответствует экспериментальным данным (10 мкКи/л) [14]. Распределение активности между <sup>95</sup>Zr и <sup>95</sup>Nb в составе цирконий-ниобиевой группы ЖРО неизвестно. Для грубых (качественных) оценок отношение активности <sup>95</sup>Zr к <sup>95</sup>Nb в растворе и в осадке можно принять равным 1 : 1. Тогда, предполагая, что в растворённом виде находится ~10 % <sup>95</sup>Nb от суммарной активности БИН, значение сброса <sup>95</sup>Nb в составе ЖРО можно оценить как 430 Ки/сут, а с учётом коэффициента ослабления ( $K_a = 0,2$ ) – 2200 Ки/сут. Тогда УА <sup>95</sup>Nb в речной воде (при  $Q = 7$  м<sup>3</sup>/с) будет составлять  $\bar{C}_w^{Nb}(T) = 3,6$  мкКи/л (130 кБк/л). Это значение хорошо соответствует результатам работы [2], где для января 1952 г. УА <sup>95</sup>Nb в воде (ТК-18) оценивалась на уровне 80 кБк/л.

6. С другой стороны, выше было показано, что в июне–августе 1951 г. верхняя граница среднего значения УА <sup>95</sup>Nb в воде верхней части реки, определённое на основе уноса водного аэрозоля с акватории реки, составило  $\bar{C}_w^{Nb}(T) = 0,27$  мКи/л (10 МБк/л). Это значение в 100 раз больше, чем при сбросе <sup>95</sup>Nb в составе ЖРО. Остаётся предположить, что летом 1951 г. основное поступление <sup>95</sup>Nb в реку происходило от внутреннего источника.

7. Оценим мощность внутреннего источника поступления <sup>95</sup>Nb в речную систему. Если доля активности <sup>95</sup>Zr в ЖРО (осадки и раствор) составляла ~10 %, то скорость поступления <sup>95</sup>Zr в реку с регламентными сбросами ЖРО можно оценить, как  $D_{Zr} \approx 430$  Ки/сут. Если

предположить, что весь  $^{95}\text{Zr}$  осаждается (и/или сорбируется) непосредственно в районе точки сброса ЖРО, то общий запас материнского  $^{95}\text{Zr}$  и дочернего  $^{95}\text{Nb}$  в ДО на верхнем участке реки (при  $t \rightarrow \infty$ ) можно оценить как  $U_{\text{Zr}} = D_{\text{Zr}} / \lambda_{\text{Zr}} = 40$  кКи и  $U_{\text{Nb}} \approx 2 \cdot U_{\text{Zr}} = 80$  кКи ( $3 \cdot 10^{15}$  Бк). Часть накопленной в ДО равновесной активности  $^{95}\text{Nb}$  переходит в речную воду в результате процессов десорбции (при взаимодействии потока движущейся речной воды с поверхностью ДО), образования ядер отдачи (при распаде  $^{95}\text{Zr}$  и при внешнем воздействии на ядра  $^{95}\text{Nb}$  комбинированного  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучения от загрязнённых ДО) и др. Отметим, что летом 1951 г. на верхнем участке в 30 м от реки мощность экспозиционной дозы превышала 5000 мкР/с [20].

8. В работе [22] проанализированы результаты исследований ветрового уноса водного аэрозоля с акватории водоёма Карачай, выполненных вблизи акватории в условиях неоднородного рельефа местности. Исследования загрязнения атмосферы выполнялись в двух точках контроля, расположенных в прибрежной зоне водоёма на расстоянии 250 и 500 м от берега, и состояли из серии последовательных однотипных циклов наблюдений с относительно небольшой экспозицией (7–10 сут) отбора проб. Отмечено, что в большинстве случаев загрязнение атмосферы вдали от водоёма (на расстоянии 500 м) было достоверно (до 30 раз) больше, чем вблизи (на расстоянии 250 м). Показано, что значительное влияние на загрязнение атмосферы вблизи наземного поверхностного источника выбросов оказывает рельеф прилегающей территории и метеорологические условия (повторяемость категорий устойчивости атмосферы, направлений и скорости ветра). Напомним, что правый берег верхнего течения р. Течи представлял собой обрыв высотой до 3 м. Такой рельеф береговой полосы приводил к образованию в прибрежной зоне вихревых воздушных потоков и застойных зон, что проявлялось в неравномерном (пятнистом) загрязнении почвы и растительности.

9. Предварительные расчётные оценки показывают, что при учёте штилевых условий значение коэффициента метеорологического разбавления  $G_s^2(T)$  (см. табл. 6) может возрасти на порядок величины, что будет сопровождаться соответствующим снижением расчётного

значения УА воды  $\overline{C}_w(T)$ . Этот вопрос требует дополнительной проработки.

## ВЫВОДЫ

1. Проанализированы архивные результаты измерений удельной активности (УА) суммы  $\beta$ -излучающих нуклидов (БИН) в пробах почвы и растительности, отобранных летом 1951 г. в прибрежных районах р. Течи, не подвергавшихся подтоплению.

2. Показано, что радиоактивное загрязнение прибрежных территорий не связано с атмосферными выбросами из труб предприятия, а результаты измерений не соответствуют общепринятым представлениям о характере распределения загрязнения.

3. Отмечено, что распределения УА верхнего слоя почвы и растительности при удалении от береговой полосы до 400 м и по длине реки до 200 км носят немонотонный (пятнистый) характер, а абсолютные значения УА БИН практически постоянны (в пределах порядка величины) на всей прибрежной территории.

4. Отмечено, что в сентябре 1951 г. радиоактивное загрязнение почвы в слое до 0,5 м по глубине имело практически равномерное распределение, а в ряде случаев возрастало с глубиной.

5. Выдвинуто предположение, что радиоактивное загрязнение почвы и растительности обусловлено  $^{95}\text{Nb}$  и произошло в результате ветрового уноса водного аэрозоля с акватории реки.

6. Выполненные модельные расчёты позволили объяснить необычный характер всех распределений и подтвердить выдвинутое предположение.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Мокров Ю.Г. Изучение параметров источника гамма-излучения в районе Метлинского пруда на реке Тече. Часть 2. Обоснование радионуклидного состава источника // Вопросы радиац. безопасности. – 2022. – № 4. – С. 40–58.
2. Мокров Ю.Г. Поведение ниобия-95 в водах реки Течи // Вопросы радиац. безопасности. – 2023. – № 2. – С. 33–46.
3. Мокров Ю.Г. Распределение циркония-95 в



- донных отложениях реки Течи в 1952–1955 годах // Вопросы радиац. безопасности. – 2023. – № 4. – С. 55–68.
4. Мокров Ю.Г. Реконструкция и прогноз радиоактивного загрязнения реки Течи. Часть I. Роль взвешенных частиц в процессе формирования радиоактивного загрязнения реки Течи в 1949–1951 гг. / Биб-ка журнала "Вопросы радиац. безопасности" № 1. – Озёрск, 2002. – 176 с.; Часть II. Реконструкция радиационной обстановки и оценка доз облучения населения прибрежных районов р. Течи за период 1949–1954 гг. / Биб-ка журнала "Вопросы радиац. безопасности" № 2. – Озёрск, 2003. – 143 с.
5. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г. и др. Методика реконструкции радионуклидного состава и активности осколков деления, накапливающихся в облучённом уране на момент его радиохимической переработки на заводе "Б" ПО "Маяк" в начале 1950-х гг. // Вопросы радиац. безопасности. – 2008. – Спецвыпуск. – С. 35–51.
6. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г. и др. Восстановление параметров источника сбросов жидких радиоактивных отходов радиохимического производства в р. Течу. Сообщение 1. Разработка методики и основные результаты // Вопросы радиац. безопасности. – 2008. – Спецвыпуск. – С. 76–91.
7. Ray S. Booth "A systems analysis model for calculation of radionuclide transport between receiving waters and bottom sediments" In: // Miller M. W.; Stannard J. N., eds. Environmental toxicity of aquatic radionuclides: Models and Mechanisms, Ann Arbor, MI: Ann Arbor Science; – 1976. – P. 133–164.
8. Generic models and parameters for assessing the environmental transfer of radionuclides from routine releases. Exposure of critical groups // Safety Series № 57. Procedure and Data. – Vienna: IAEA, 1982.
9. Общие положения безопасности АЭС. Методы расчёта распределения радиоактивных веществ с АЭС и облучение окружающего населения. Нормативно-технический документ стран-членов СЭВ и СФРЮ 38.220.56–84. – М.: Энергоатомиздат, 1984.
10. Технический отчёт МАГАТЭ № 1616 Quantification of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments for radiological assessments // IAEA, VIENNA, 2009. – 616 с.
11. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. (IAEA) Technical Report Series no. 472. – Vienna, Austria, 2010.
12. Åström M.E., Peltola P., Viratsalo J.J. et al. Niobium in boreal streams and sediments // Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis. – 2008. – No. 8. – P. 139.
13. Ильин Д.И. Миграция радиоактивных веществ из открытых водоёмов: дисс. ... д-ра техн. наук / Архив ПО "Маяк", 1956. – 270 с. – Опул. в: // Вопросы радиац. безопасности. – 2004. – № 4. – С. 46–59; Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 1. – С. 60–77; Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 2. – С. 50–75; Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 3. – С. 48–66; Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 4. – С. 28–39.
14. Марей А.Н., Ильин Д.И., Кардеева А.А. и др. Влияние промышленных стоков завода им. Д.И. Менделеева, сбрасываемых в р. Течу, на санитарные условия жизни и здоровье населения прибрежных пунктов: Отчёт / ЦНИЛ, ИБФ, Институт гигиены труда АМН СССР; Архив ФГУП "ПО "Маяк". – Опул. в // Вопросы радиац. безопасности. – 2009. – № 2. – С. 55–71.
15. Хай Д.М. Идентификация элементов и количественное определение примесей методом поглощения бета-излучения: Отчёт / Архив ПО "Маяк", Озёрск, 1952. – 44 с.
16. ОСТ 95.600-78. Вещества радиоактивные. Метод определения состава радионуклидов в источниках бета-излучения измерением поглощения излучения в алюминиевых фильтрах.
17. Методика прогнозирования состояния загрязнения водоёмов при нарушении нормальной эксплуатации АЭС. Методические указания, РД 52.26. 174-88. – М., 1988. – 49 с.
18. Казаков С.В., Уткин С.С. Исследование проблем обеспечения радиационной безопасности водных экосистем / под. ред. И.И. Линге; ИБРАЭ РАН. – М.: ООО "САМ Полиграфист", 2018. – 270 с.
19. Отчёт по обследованию загрязнения радиоактивными веществами района Метлино / Лемберг В.К., Антипина И.В., Голубитская Н.Н. и др., Архив ФГУП "ПО "Маяк". – 1951. – 45 с. – Реферат отчёта опул. в // Вопросы радиац. безопасности. – 2004. – № 3. – С. 61–71.



20. Александров А.П., Мишенков Г.В., Тарасенко Н.Ю. и др. Загрязнение территории, прилегающей к заводу им. Менделеева: Отчёт / Архив ПО "Маяк", 1951. – Оpubл. в: // Вопросы радиац. безопасности. – 2006. – № 3. – С. 60–74; Вопросы радиац. безопасности. – 2006. – № 4. – С. 60–69; Вопросы радиац. безопасности. – 2007. – № 1. – С. 50–62.
21. Мокров К.Ю., Мокров Ю.Г. Изучение параметров источника генерации водного аэрозоля с акватории водоёма Карачай // Вопросы радиац. безопасности. – 2016. – № 1. – С. 20–29.
22. Мокров Ю.Г., Мокров К.Ю. Особенности атмосферного переноса водного аэрозоля с акватории водоёма Карачай в условиях неоднородного рельефа местности // Вопросы радиац. безопасности. – 2019. – № 2. – С. 3–21.
23. Мокров К.Ю., Мокров Ю.Г. Изучение загрязнения атмосферы вблизи водоёма Карачай в результате ветрового уноса водного аэрозоля с его поверхности // Вопросы радиац. безопасности. – 2017. – № 1. – С. 67–79.
24. Гусев Н.Г., Беляев В.А. Радиоактивные выбросы в биосфере: Справочник. – М.: Энергоатомиздат, 1986.
25. Алексахин Р.М., Булдаков Л.А., Губанов В.А. и др. Крупные радиационные аварии: последствия и защитные меры / Под общей ред. Л.А. Ильина и В.А. Губанова. – М.: ИздАТ, 2001. – 752 с.

УДК 613.6+53.04

© 2023

**РАДИОГЕННЫЙ РИСК СМЕРТИ ОТ ЗЛОКАЧЕСТВЕННЫХ  
НОВООБРАЗОВАНИЙ СРЕДИ РАБОТНИКОВ, НАНЯТЫХ  
В РАЗНЫЕ ПЕРИОДЫ ДЕЯТЕЛЬНОСТИ ПО "МАЯК"***И.С. Кузнецова**Россия, г. Озёрск, ФГБУН Южно-Уральский институт биофизики ФМБА России*

Проведён сравнительный эпидемиологический анализ радиогенного риска смерти от солидных злокачественных новообразований работников, нанятых в разные периоды деятельности ПО "Маяк". Показано, что оценки радиогенного риска смерти от солидных ЗНО, за исключением органов основного депонирования плутония, для лиц, нанятых в период становления производства (1948–1958 годов найма) и в период штатной эксплуатации (1959–1982 годов найма) не отличаются и составляют 0,2 на 1 Гр. В первой субкогорте из 1596 смертей 176,1 (11,0 %) случая связаны с профессиональным радиационным воздействием, во второй субкогорте из 802 смертей только 20,3 случая (2,5 %) можно отнести к радиационно-индуцированным.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ЗЛОКАЧЕСТВЕННЫЕ НОВООБРАЗОВАНИЯ, РАДИОГЕННЫЙ РИСК, ПРОФЕССИОНАЛЬНОЕ ОБЛУЧЕНИЕ

Представленные в предыдущих многочисленных публикациях результаты анализа показателей заболеваемости и смертности от злокачественных новообразований, болезней системы кровообращения и других заболеваний персонала ПО "Маяк" главным образом основывались на данных когорты работников, нанятых в 1948–1982 гг. Когорта включает лиц, нанятых в период освоения технологии – первые десять лет деятельности предприятия (1948–1958 гг.), работавших в условиях радиационного воздействия, существенно превышающего не только современные, но и принятые в 1960-е годы нормативы радиационной безопасности [1]. Именно эта субкогорта определяет оценки риска в когорте в целом.

В то же время все страны, имеющие радиационно-опасные производства, тратят значительные усилия на оценку последствий работы в современных условиях эксплуатации предприятий [2–4].

Целью настоящего исследования является сравнительный эпидемиологический анализ коэффициента избыточного относительного риска смерти от злокачественных новообразований и других причин среди работников, начавших свою трудовую деятельность в разные периоды деятельности ПО "Маяк".

**МАТЕРИАЛ И МЕТОДЫ*****Критерии определения исследуемой  
когорты и субкогорт сравнения***

Совершенствование технологий производства и накопление информации о последствиях радиационного воздействия на здоровье человека постоянно требуют совершенствования нормативно-правовой базы в области радиационной безопасности. За 70-летний период развития атомной промышленности в СССР и Российской Федерации дозовые пределы для работников ядерно-опасных производств уменьшились на порядок, составляя 0,1 Р/день (30 Р/год) в 1950 г. и 50 мЗв/год (максимальная доза) с 1996 г. [5]. В настоящее время для обеспечения радиационной безопасности используется величина эффективной дозы, предел которой составляет 20 мЗв/год [6].

Пределы доз, отражающие научные знания не только о детерминированных эффектах радиации, но также об отдалённых стохастических последствиях, в первую очередь о возникновении злокачественных новообразований (ЗНО), начали применяться с начала 1960-х годов.

Поэтому для сравнения последствий про-

фессионального облучения целесообразным представляется разделение работников на две субкогорты: 1948–1958 и 1959–1982 годов найма.

### *Характеристика когорты*

Когорта состоит из 25756 работников реакторного, радиохимического и химико-металлургического, ремонтно-механического завода и завода по водоподготовке ПО "Маяк" [7, 8]. Субкогорта 1948–1958 годов найма имеет несколько больший размер как по численности (54 % от общего числа членов когорты), так и по накопленному количеству человеко-лет наблюдения (55 % от общего количества человеко-лет) по сравнению с субкогортой 1959–1982 годов найма.

Более половины лиц, включённых в исследуемую когорту, проживали в городе до конца периода наблюдения (31.12.2018) – 54 % (резиденты), 46 % выехали из города (мигранты).

Жизненный статус установлен для 93 % работников. На конец периода наблюдения умерли 74 % членов когорты с известным жизненным статусом: 89 % в субкогорте 1948–1958 годов найма и 57 % в субкогорте 1959–1982 годов найма.

Анализ ограничен случаями смерти от солидных ЗНО (коды по МКБ-10: C00–C97). Оценка радиогенного риска проведена только на основе информации о дозе профессионального внешнего  $\gamma$ -облучения, поэтому из анализа исключены следующие причины смерти: рак лёгкого (C34), печени (C22), костей и суставных хрящей (C40–C41) и саркомы мягких тканей (C49), для которых доказано, что основным источником радиогенного риска является внутреннее облучение от инкорпорированного плутония. Таким образом, в анализ включены 2398 случаев (далее – ЗНО\*). Для когорты ПО "Маяк" создана дозиметрическая система, в которой представлены годовые оценки доз внешнего  $\gamma$ -излучения в органах и тканях тела человека [9]. В работе использовалась накопленная доза на толстую кишку для возможности сравнения полученных результатов с данными других исследований, в частности когорты пожизненного исследования жертв атомных бомбардировок в Японии (когорты LSS).

В субкогорте 1948–1958 годов найма

только 25 % лиц накопили дозу менее 100 мГр, средняя доза составила более 0,5 Гр, а медиана превышала 0,3 Гр. Среднее значение накопленной дозы во второй субкогорте в 6 раз меньше, чем в первой и составляет 0,1 Гр. Более того, 90 % лиц 1959–1982 годов найма накопили менее 0,3 Гр. Однако даже в этой субкогорте доза 49 человек превысила 1 Гр (рис. 1).

### *Методы анализа данных*

Данные для анализа были организованы в многомерную табл. 1, где количество случаев и накопленных человеко-лет наблюдения распределены в зависимости от пола, календарного года (1948–1949; с 1950 по 2014 по 5-летним интервалам; 2015–2018), достигнутого возраста (с 15 до 84 по 5-летним возрастным интервалам; 85–100 лет), индикатора выезда из города (резидент; мигрант) и уровня накопленной дозы внешнего  $\gamma$ -излучения в толстой кишке при исследовании всех локализаций в сумме и соответствующих органных доз при исследовании отдельных локализаций ЗНО с лагом 10 лет (0; 0,001–0,009; 0,010–0,024; 0,025–0,049; 0,050–0,099; 0,100–0,199; 0,200–0,499; 0,500–0,749; 0,750–0,999; 1,000–1,499; 1,500–1,999; 2,000–2,999; 3,000 и более Гр).

Период наблюдения за работником начинался в момент его найма на ПО "Маяк" и заканчивался либо 31.12.2018, либо датой смерти.

В работе использованы регрессионные модели относительного риска (ОР), включающие описание показателей смертности в отсутствии радиационного фактора и избыточный радиогенный риск (ИОР). Для нивелирования различий показателей среди мужчин и женщин, а также лиц разных возрастов проведена стратификация данных по категориям этих факторов. Различия показателей для резидентов и мигрантов учтены в модели фонового показателя. В качестве модели избыточного относительного риска использовалась линейная зависимость от накопленной дозы. Тестирование нелинейных форм зависимости не проводилось, поскольку неоднократно было показано отсутствие нелинейности как в когортах работников радиационно-опасных производств, так и в когорте LSS [8, 10]. Дополнительно проведены оценки ИОР для мигрантов и резидентов отдельно, для

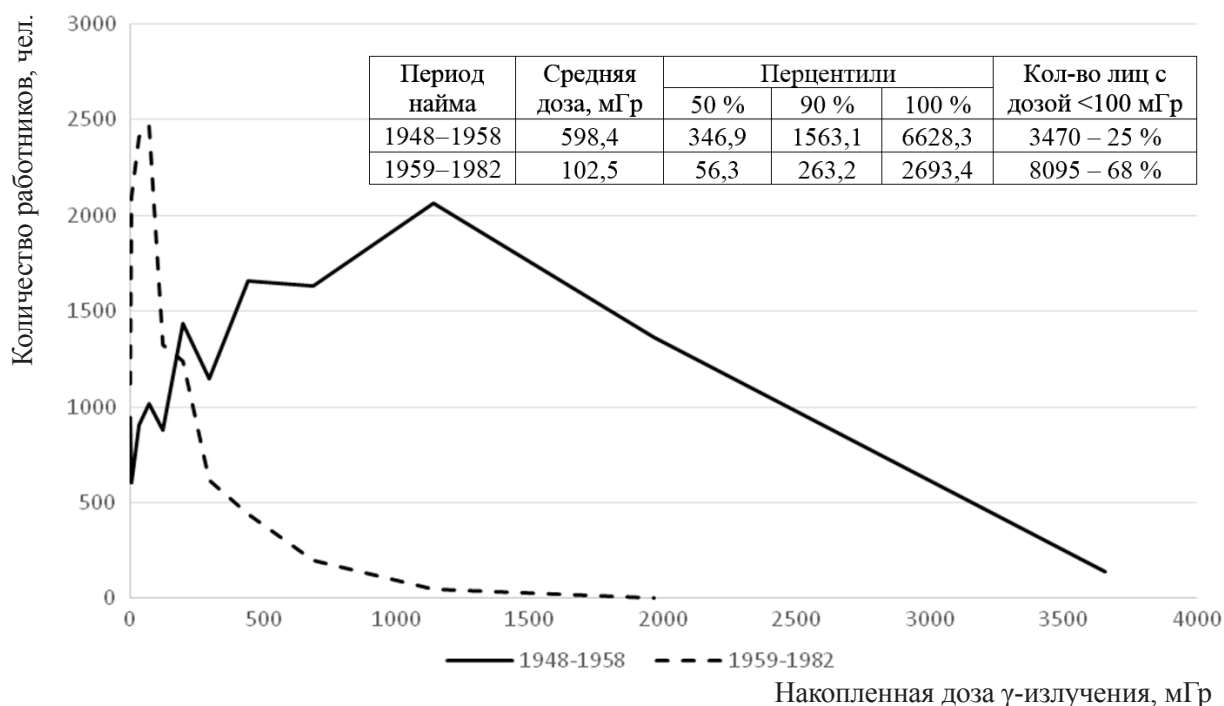


Рис. 1. Дозиметрическая характеристика когорты работников ПО "Маяк".  
Сплошная линия – субкогорта работников 1948–1958 годов найма;  
пунктирная линия – субкогорта работников 1959–1982 годов найма

Состав когорты работников ПО "Маяк"

Таблица 1

Годы найма	Число лиц	Средняя доза внешнего γ-излучения, мГр <sup>1)</sup>	Число человеко-лет наблюдения	Количество умерших (% от количества лиц с известным жизненным статусом)
Работники, проживавшие в г. Озёрске на конец периода наблюдения				
1948–1958	6488	494	290280	5791 – 89 %
1959–1982	8523	128	341215	4610 – 57 %
Всего	15 011	324	631495	10401 – 69 %
Работники, выехавшие из г. Озёрска				
1948–1958	7303	477	298791	5387 – 89 %
1959–1982	3442	100	134439	1918 – 65 %
Всего	10745	344	433230	7305 – 68 %
Все лица, включённые в когорту				
1948–1958	13791 – 54 %	485	589071 – 55 %	11178 – 89 %
1959–1982	11965 – 46 %	117	475654 – 45 %	6528 – 57 %
Всего	25756 – 100 %	333	1064725 – 100 %	17706 – 74 %

Примечание. <sup>1)</sup> Использована оценка дозы на толстую кишку.

дозового диапазона до 100 мЗв, а также для ограниченного периода наблюдения до 2004 г., когда качество данных о жизненном статусе мигрантов было существенно выше.

Оценка параметров моделей, границ 95 % доверительного интервала, тесты отношения правдоподобия были проведены в программе AMFIT пакета Epcure [11].

## РЕЗУЛЬТАТЫ

В исследуемой когорте на конец периода наблюдения умерли от ЗНО 3842 человека (21,7 % от общего количества умерших), в том числе 3620 от солидных ЗНО (2398 от ЗНО\*). На ЗНО органов пищеварения приходится 1429 случаев (39,5 %), в том числе на рак печени (113 случаев); на органы дыхания – 1136 случаев (31,4 %), в том числе на рак лёгкого 1024 случая, на органы мочеполовой системы – 447 случаев (12,3 %), 85 случаев составляют ЗНО костей и соединительной ткани. В субкогортах структура солидных ЗНО не отличается от наблюдаемой для всей когорты.

Анализ зависимости фоновой смертности от местонахождения работника на момент смерти показал, что для мигрантов коэффициенты на 35 % ниже, чем для резидентов. Наибольшие различия найдены для ЗНО центральной нервной системы (ОР = 0,4; 95 % ДИ: 0,2–0,6) и ЗНО толстого кишечника (ОР = 0,4; 95 % ДИ: 0,3–0,5). Статистически значимые различия также получены для отдельных локализаций ЗНО: желудка (ОР = 0,8; 95 % ДИ: 0,6–0,9), поджелудочной железы (ОР = 0,4; 95 % ДИ: 0,3–0,6), гортани (ОР = 0,6; 95 % ДИ: 0,4–0,9), простаты (ОР = 0,4; 95 % ДИ: 0,3–0,6) и почки (ОР = 0,5; 95 % ДИ: 0,4–0,8).

В целом во всей когорте получена положительная оценка избыточного радиогенного риска на единицу дозы (ИОР/Гр) для всех ЗНО\* (0,2; 95 % ДИ: 0,1–0,3), а также для большинства локализаций, входящих в исследование (рис. 2). При этом статистически значимые оценки ИОР/Гр получены для ЗНО органов пищеварения (0,2; 95 % ДИ: 0,1–0,3), в первую очередь за счёт ЗНО пищевода (2,0; 95 % ДИ: 0,8–4,6), желудка (0,2; 95 % ДИ: 0,04–0,4) и колоректальных раков (0,3; 95 % ДИ: 0,1–0,5), а также ЗНО мочеполовых органов в целом

(0,2; 95 % ДИ: 0,01–0,4). Также во всей когорте статистически значимый ИОР/Гр выявлен для ЗНО органов дыхания (0,6; 95 % ДИ: 0,1–1,4), однако для наиболее представительной по количеству случаев (без учёта рака лёгкого) локализации рака гортани (112 случаев) оценка статистически незначимо отличалась от нуля (0,3; 95 % ДИ: -0,06–1,1).

В субкогорте 1948–1958 годов найма (рис. 3) получены практически аналогичные оценки, как в когорте 1948–1982 годов найма в целом. Стоит отметить единственное полученное отличие: оценка ИОР/Гр для ЗНО органов дыхания составила 0,3 (95 % ДИ: -0,1–0,9), оказавшись в два раза ниже, чем в когорте в целом, и статистически незначимой. Коэффициент радиогенного риска смерти от ЗНО\* составил 0,2; 95 % ДИ: 0,1–0,3.

В отличие от субкогорты 1948–1958 годов найма, во второй субкогорте лиц 1959–1982 годов найма статистически значимый радиогенный риск получен только для рака пищевода (ИОР/Гр = 1,4; 95 % ДИ: 0,2; 4,8). Для колоректального рака, ЗНО поджелудочной железы, гортани, простаты и мочевого пузыря точечная оценка коэффициента радиационного риска также была положительной (рис. 4). Даже при объединении локализаций в группы статистически значимых оценок радиогенного риска не выявлено. Так, для ЗНО носоглотки точечная оценка ИОР/Гр составила 0,0,  $p > 0,5$ ; для ЗНО органов пищеварения – 0,3,  $p = 0,4$ ; для ЗНО органов дыхания – -0,3,  $p > 0,5$ ; ЗНО мочеполовой системы – -0,1,  $p > 0,5$ . В целом для всех ЗНО\* точечная оценка ИОР/Гр составила 0,2; 95 % ДИ: -0,2; 0,7.

Для всех ЗНО\* в исследуемой когорте 1948–1982 годов найма из 2398 смертей 185,7 случая (7,7 %) обусловлены действием внешнего  $\gamma$ -облучения (табл. 2). Из исследованных локализаций наибольшая доля радиогенных случаев, рассчитанная на основании точечной оценки ИОР/Гр, была получена для ЗНО пищевода – 28,3 % (22,1 из 78 случаев). Более 10 % на долю радиогенных случаев получено для рака гортани – 10,5 % (8,3 из 79 случаев) и ЗНО органов дыхания в целом (без рака лёгкого) – 17,1 % (19,2 из 112 случаев), а также ЗНО яичников и придатков матки – 12,1 % (5,2 из 43 случаев).



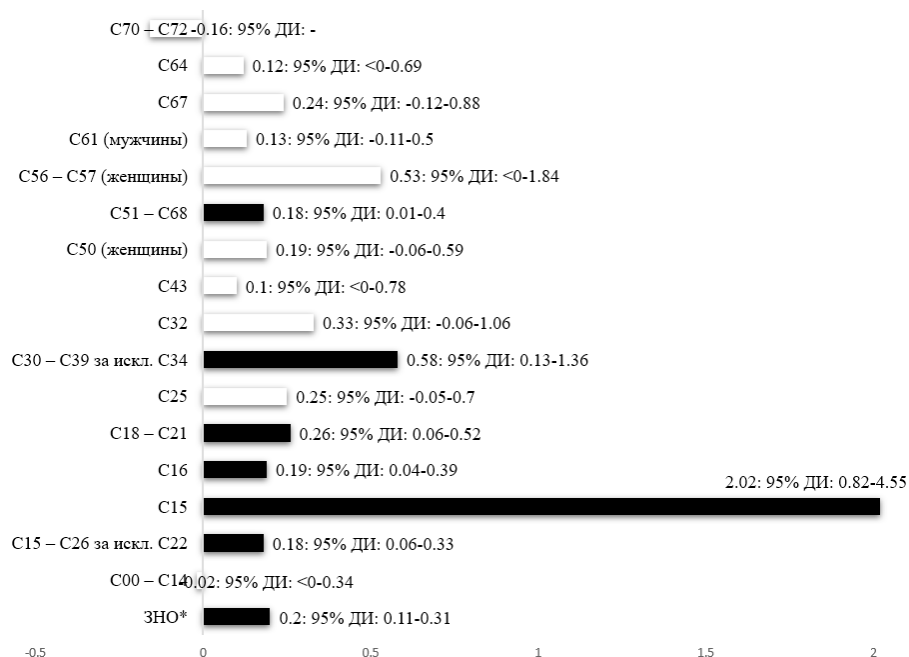


Рис. 2. Коэффициент избыточного радиационного риска смерти (ИОР/Гр; 95 % ДИ) от ЗНО\* различных локализаций (МКБ-10) в когорте работников ПО "Маяк" 1948–1982 годов найма

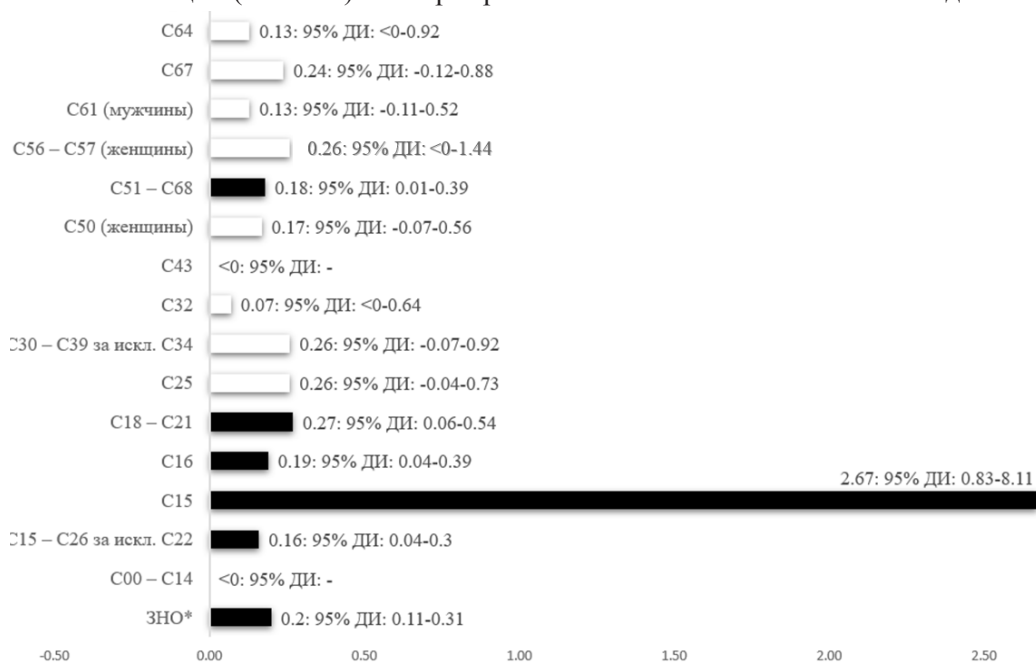


Рис. 3. Коэффициент избыточного радиационного риска смерти (ИОР/Гр; 95 % ДИ) от ЗНО\* различных локализаций (МКБ-10) в когорте работников ПО "Маяк" 1948–1958 годов найма

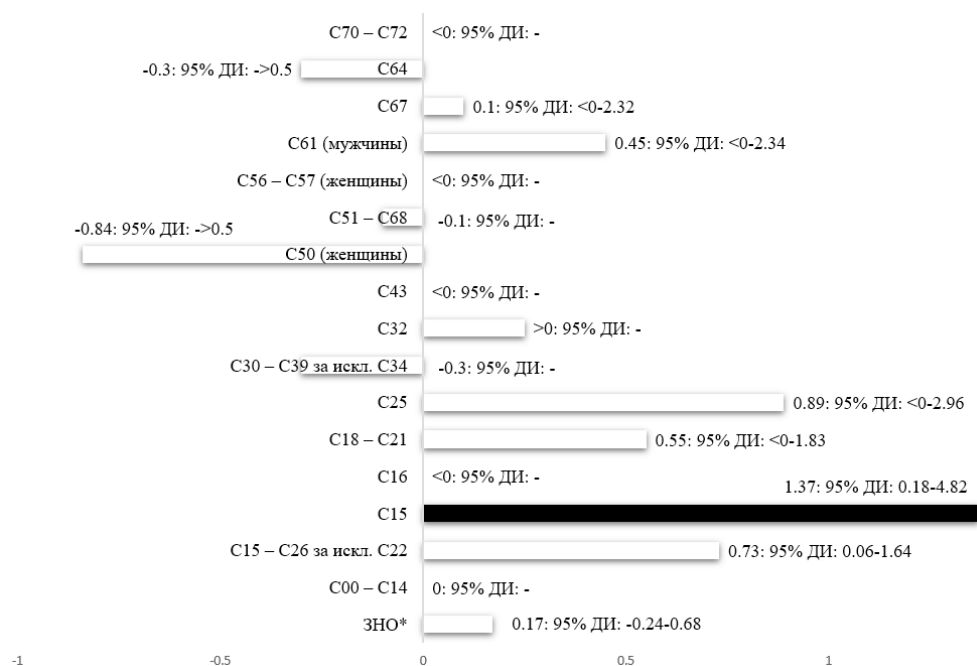


Рис. 4. Коэффициент избыточного радиационного риска смерти (ИОР/Гр; 95 % ДИ) от ЗНО\* различных локализаций (МКБ-10) в когорте работников ПО "Маяк" 1959–1982 годов найма

Таблица 2

Количество фактических и радиационно индуцированных случаев

Локализация	Фактическое количество случаев	ИОР/Гр за весь период	Количество избыточных случаев	Доля радиогенных случаев, %
ЗНО*	2398	0,20 (0,11–0,31)	185,7	7,7
ЗНО носоглотки	101	-0,02 (< 0–0,34)	–	–
ЗНО органов пищеварения	1316	0,18 (0,06–0,33)	94,5	7,2
ЗНО пищевода	78	2,02 (0,82–4,55)	22,1	28,3
ЗНО желудка	563	0,19 (0,04–0,39)	43,6	7,7
Колоректальные раки	425	0,26 (0,06–0,52)	39	9,2
ЗНО поджелудочной железы	179	0,25 (-0,05–0,70)	14,8	8,3
ЗНО органов дыхания	112	0,58 (0,13–1,36)	19,2	17,1
ЗНО гортани	79	0,33 (-0,06–1,06)	8,3	10,5
Меланома кожи	53	0,1 (< 0–0,78)	1,8	3,4
ЗНО молочной железы	130	0,19 (-0,06–0,59)	8,87	6,8
ЗНО мочеполовой системы	447	0,18 (0,01–0,4)	31,8	7,1
ЗНО яичника и придатков матки	43	0,53 (< 0–1,84)	5,2	12,1
ЗНО предстательной железы	147	0,13 (-0,11–0,50)	7,7	5,2
ЗНО мочевого пузыря	83	0,24 (-0,12–0,88)	6,8	8,2
ЗНО почки	106	0,12 (< 0–0,69)	4	3,8
ЗНО центральной нервной системы	85	-0,16 (p > 0,5)	–	–

Анализ данных отдельно для мигрантов и резидентов не дал статистически различных оценок коэффициента риска. Для всех ЗНО\* в сумме ИОР/Гр для резидентов составил 0,15 (95 % ДИ: 0,05; 0,27), для мигрантов – 0,29 (95 % ДИ: 0,14; 0,48). Ограничение периода наблюдения (до 2004 г.) снизило оценку радиогенного риска среди мигрантов на 25 % (ИОР/Гр = 0,16; 95 % ДИ: 0,06–0,27). Оценка ИОР/Гр при ограничении накопленной дозы (менее 100 мГр) оказалась статистически незначимо отличающейся от нуля.

### ОБСУЖДЕНИЕ

Регистр персонала ПО "Маяк" содержит медико-дозиметрические данные за 70-летний период наблюдения, которые позволяют проводить эпидемиологические исследования по оценке радиогенного риска медицинских последствий профессионального облучения на здоровье человека, в первую очередь оценивать радиогенный риск злокачественных новообразований.

Все страны, имеющие атомную промышленность, ведут радиационно-эпидемиологические регистры работников с целью получения прямых оценок радиогенного риска. Уникальность регистра работников ПО "Маяк" обусловлена, главным образом, наличием дозиметрических данных о внутреннем облучении радионуклидами. Тем не менее, имеющиеся оценки органных доз внешнего  $\gamma$ -излучения, основанные, главным образом, на индивидуальных измерениях, позволяют получать значимые результаты по оценке риска в зависимости от уровня внешнего облучения.

Результаты настоящей работы для всей когорты персонала, нанятого на ПО "Маяк" в 1948–1982 гг., близки к оценкам из других публикаций с использованием данных этой же когорты [8, 12]. Так в работе [13] ИОР/Гр смерти от солидных ЗНО составил 0,16; 95 % ДИ: 0,07–0,26. В тоже время можно отметить, что точечные оценки радиогенного риска в других известных когортах персонала выше оценок для когорты работников ПО "Маяк". В объединённой когорте работников атомной промышленности 15 стран ИОР/Гр смерти от солидных раков за исключением

раков лёгкого и плевры составил 0,59 (90 % ДИ: -0,16–1,51), в объединённой когорте работников Великобритании, США и Франции (INWORKS) [14, 15] – 0,46 (90 % ДИ: 0,11–0,85) [13, 14].

Необходимо отметить, что в настоящем исследовании не учитывались дозы внутреннего  $\alpha$ -облучения. Несмотря на то, что многочисленные публикации свидетельствуют об отсутствии радиогенного риска ЗНО, за исключением раков органов основного депонирования плутония, от внутреннего облучения, полученные статистически значимые оценки избыточного риска смерти от ЗНО таких локализаций как рак гортани и мочеполовой системы требуют уточнения с учётом оценок доз  $\alpha$ -облучения плутонием.

Величина радиогенного риска смерти от ЗНО\* для лиц, нанятых на работу в разные периоды деятельности ПО "Маяк" (период становления производства – 1948–1958 годов найма и период штатной эксплуатации – 1959–1982 годов найма), практически не отличается и составляет 0,2; 95 % ДИ: 0,1–0,3 и 0,2; 95 % ДИ: -0,2–0,7, хотя коэффициент избыточного риска во второй субкогорте статистически значимо от нуля не отличается. Этот факт может служить обоснованием неправомерности двукратного уменьшения риска для области малых доз и мощностей доз.

На фоне остальных локализаций выделяется рак пищевода, для которого был получен статистически значимый риск в обеих субкогортах. Более того, точечная оценка коэффициента риска во второй субкогорте в 5 раз выше, чем в первой (рис. 3 и 4). Литературные данные не подтверждают полученные оценки. Так в когорте радиационных работников Великобритании по последним публикациям ИОР/Гр для ЗНО этой локализации составил -0,15 на 1 Гр [14]. Детальный анализ радиогенного риска для отдельных локализаций позволит выяснить причины различий.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведён сравнительный эпидемиологический анализ радиогенного риска смерти от солидных злокачественных новообразований работников, начавших свою трудовую

деятельность в разные периоды деятельности ПО "Маяк".

В анализе учитывалась только накопленная доза внешнего  $\gamma$ -излучения.

Показано, что оценки радиогенного риска смерти от солидных ЗНО, за исключением органов основного депонирования плутония, для лиц, нанятых в период становления производства (1948–1958 годов найма) и в период штатной эксплуатации (1959–1982 годов найма), не отличаются и составляют 0,2 на 1 Гр.

В первой субкогорте из 1596 смертей 176,1 (11,0 %) случая связаны с радиационным воздействием, во второй субкогорте из 802 смертей только 20,3 случая (2,5 %) можно отнести к радиационно-индуцированным.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Кошурникова Н.А., Окатенко П.В., Шильникова Н.С. и др. Медицинские последствия профессионального облучения (уровни онкосмертности среди персонала основных производств ПО "Маяк") // Медицина экстремальных ситуаций. – 2006. – № 2(16). – С. 5–14.
2. Pyin, L.A., Kiselev M.F., Panfilov A.P. et al. Medical dosimetric registry of Russian atomic industry employees: current status and perspectives // *Int. J. Low Radiation*. – 2006. – V. 2. – No. 3/4. – P. 207–218.
3. Richardson D.B., Cardis E., Daniels R.D. et al. Risk of cancer from occupational exposure to ionizing radiation: retrospective cohort study of workers in France, the United Kingdom, and the United States (INWORKS) // *BMJ*. – 2015. – No. 351 – P. 53–59.
4. Haylock, R.G.E., Gillies, M., Hunter N. et al. Cancer mortality and incidence following external occupational radiation exposure: an update of the 3rd analysis of the UK National Registry for Radiation Workers // *Br. J. Cancer*. – 2018. – No. 119. – P. 631–637.
5. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009). СанПин 2.6.1.252309. – М.: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора. – 2009. – 100 с.
6. Панфилов А.П. Эволюция системы обеспечения радиационной безопасности атомной отрасли страны и её современное состояние // *Радиация и риск*. – 2016. – Т. 25. – № 1. – С. 47–64.
7. Koshurnikova N.A., Shilnikova N.S., Sokolnikov M.E. et al. Medical-dosimetry registry of workers at the Mayak production association // *Int. J. Low Radiation*. – 2006. – V. 2. – No. 3/4. – P. 236–242.
8. Sokolnikov M., Gilbert E., Shonfield S., Koshurnikova N.A. Radiation effects on mortality from solid cancers other than lung, liver, and bone cancer in the Mayak worker cohort: 1948–2008 // *PLoS One*. – 2015. – V. 10(2). – P. e0117784.
9. Vasilenko E.K. et al. Mayak worker dosimetry study: an overview // *Health Phys.* – 2007. – V. 93. – No. 3. – P. 190–206.
10. Ozasa K. et al. Studies of the mortality of atomic bomb survivors, Report 14, 1950–2003: an overview of cancer and noncancer diseases // *Radiat. Res.* – 2012. – No. 177. – P. 229–243.
11. Preston D.L., Lubin J., Pierce D.A. et al. *Epicure User Guide* // Ottawa: Risk Sciences International. – 2015. – V. 2.01.
12. Hunter N., Harrison J.D., Kuznetsova I.S., Labutina E.V. Solid cancer incidence other than lung, liver and bone in Mayak workers: 1948–2004 // *BJC*. – 2013. – V. 109. – No. 7. – P. 1989–1996.
13. Haylock R.G.E., Gillies M., Hunter N. et al. Cancer mortality and incidence following external occupational radiation exposure: an update of the 3rd analysis of the UK national registry for radiation workers // *BJC*. – 2018. – No. 119. – P. 631–637.
14. Richardson D.B., Cardis E., Daniels R.D. et al. Risk of cancer from occupational exposure to ionising radiation: retrospective cohort study of workers in France, the United Kingdom, and the United States (INWORKS) // *BMJ*. – 2015. – No. 351. – P. 53–59.

## ПАМЯТИ АКАДЕМИКА ЛЕОНИДА АНДРЕЕВИЧА ИЛЬИНА



7 октября 2023 г. на 96-м году жизни скончался выдающийся учёный и организатор здравоохранения, Герой Социалистического Труда, лауреат Государственных премий СССР и Российской Федерации, Нобелевской премии мира, почетный президент ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России Леонид Андреевич Ильин.

Л. А. Ильин родился 15 марта 1928 г. в г. Харькове. Трудовой путь начал в 1953 г., когда с отличием окончил Военно-морской факультет Первого Ленинградского медицинского института им. И.П. Павлова. В 1955 г., в период службы в военно-морских силах СССР в должности начальника медицинской службы боевого корабля, организовал первую на Черноморском флоте радиологическую лабораторию. После демобилизации, в 1958–1961 гг., работал старшим научным сотрудником в радиобиологическом отделе НИИ Военно-Морского Флота в Ленинграде.

С 1961 по 1968 гг. был руководителем лаборатории радиационной защиты и заместителем директора по научной работе Ленинградского НИИ радиационной гигиены. В этот период Л.А. Ильин принимал участие в испытаниях ядерного оружия на Новой Земле и Семипалатинском полигоне.

В 1968 г. профессор Л.А. Ильин возглавил крупнейший в мире научный центр в области радиобиологии, радиационной медицины и радиационной безопасности – Институт биофизики Минздрава СССР, которым он руководил на протяжении 40 лет. За заслуги перед государством в 1977 г. Институт биофизики был награждён Орденом Ленина.

Основные научные интересы Л.А. Ильина были связаны с вопросами токсикологии радиоактивных продуктов деления урана и плутония, исследований в области медицинских средств защиты от их воздействия на организм, с созданием лекарственных препаратов и медико-биологических систем защиты от гамма- и гамма-нейтронного излучений. Разработанные под его руководством лекарственные препараты и системы защиты внедрены в атомной промышленности, атомном подводном флоте и в ракетных войсках стратегического назначения.

Академик Ильин вместе с коллегами впервые в мире в 1970 г., то есть за 16 лет до аварии на Чернобыльской АЭС, создал "Методические указания для разработки мероприятий по защите населения в случае аварии ядерных реакторов" и обосновал аварийные нормативы облучения людей в этих ситуациях. С первых дней чернобыльской аварии Л.А. Ильин в качестве научного руководителя работ по защите ликвидаторов и жителей близлежащих территорий осуществлял координацию медико-биологических и радиационно-гигиенических задач, включая проблемы эвакуации населения.

Академик Л. А. Ильин более 30 лет представлял СССР и Российскую Федерацию в Научном комитете ООН по действию атомной радиации, а также дважды избирался членом Главного Комитета Международной Комиссии по радиационной защите, которая определяет всю научно-техническую политику в мире в области радиационных проблем и нормирования ионизирующих излучений.

В 1980 г. в Женеве трое отечественных учёных (Е.И. Чазов, Л.А. Ильин, М.И. Кузин) и трое американских (Б. Лаун, Э. Чевиян, Г. Миллер) создали международное движение "Врачи против ядерной войны". В 1985 г. это движение было удостоено Нобелевской премии Мира.

В 1978 г. Л.А. Ильин был избран действительным членом Академии медицинских наук СССР, с 1980 по 1984 гг. состоял членом Президиума, а с 1984 по 1990 гг. был вице-президентом АМН СССР.



За научные исследования и практические разработки в области защиты персонала, населения, а также личного состава вооружённых сил от воздействия радиации академик Л.А. Ильин удостоен Ленинской премии, Государственных премий СССР и Российской Федерации и дважды премии Правительства Российской Федерации.

В 1988 г. за заслуги в области науки о действии радиации на организм человека и радиационной защиты Л.А. Ильин был удостоен звания Героя Социалистического Труда с вручением ему ордена Ленина и медали "Серп и Молот".

Л.А. Ильин в 1998, 2003 и 2014 гг. был удостоен благодарностей Президента РФ за большой вклад в развитие отечественной науки в области радиационной защиты и за заслуги в развитии здравоохранения, медицинской науки и многолетнюю плодотворную трудовую деятельность.

В 2022 г. за заслуги в развитии здравоохранения, мужество и самоотверженность, проявленные при исполнении врачебного долга, и многолетнюю добросовестную работу был награжден Президентом Российской Федерации В.В. Путиным орденом Александра Невского.

Академик Л.А. Ильин – признанный мировой авторитет в области радиобиологии и радиационной медицины. Проницательность, смелость и принципиальность в принятии решений в сложных, экстремальных условиях, умение отстаивать свою научную и гражданскую позицию снискали Л.А. Ильину высокий авторитет в международных научных кругах и глубокое уважение соратников. Леонид Андреевич Ильин посвятил свою жизнь служению Отечеству, медицине и науке. Своим самоотверженным трудом внес неоценимый вклад в укрепление российской государственности, в создание высочайших стандартов радиобиологической медицины.

В судьбе Леонида Андреевича, как в зеркале, отражена история нашей Великой Родины, запечатлены памятные для всех соотечественников события, повлиявшие на ход развития страны. Светлая память о выдающемся учёном и необыкновенном человеке навсегда сохранится в наших сердцах.

## ПАМЯТИ ВАЛЕНТИНА ФЁДОРОВИЧА ХОХРЯКОВА



20 ноября 2023 г. перестало биться сердце нашего коллеги доктора биологических наук, профессора, талантливого учёного Валентина Фёдоровича Хохрякова.

Трудовая биография В.Ф. Хохрякова началась в 1951 г. на одном из заводов Производственного объединения "Маяк" после окончания Ленинградского университета. С 1957 г. В.Ф. Хохряков трудился в институте биофизики (ныне ЮУрИБФ), где в полной мере раскрылся его талант исследователя и руководителя. При его непосредственном и активном участии в ЮУрИБФ была создана уникальная лаборатория метаболизма и дозиметрии радиоактивных нуклидов.

В возглавляемой Валентином Фёдоровичем лаборатории были разработаны фундаментальные основы и подготовлен комплекс прикладных моделей и методик, которые в кратчайшие сроки были внедрены в практику дозиметрического контроля, диагностирования профессиональных радиационных заболеваний и ограничения облучения работников предприятий и населения. Широкое международное признание получила разработанная В.Ф. Хохряковым собственная модель расчёта, основанная на оригинальной системе оценки растворимости аэрозолей транс-урановых нуклидов.

Под руководством В.Ф. Хохрякова была создана оригинальная отечественная научная школа метаболизма и дозиметрии инкорпорированных радионуклидов. Валентин Фёдорович проводил большую работу по подготовке молодых научных кадров в институте. Под руководством Валентина Фёдоровича подготовлено пять кандидатских диссертаций. Ученики В.Ф. Хохрякова получили широкую известность как среди российских научных работников и практических специалистов в области радиационной безопасности, так и среди зарубежных ученых. Многие методики, разработанные под руководством В.Ф. Хохрякова, прошли проверку временем, надёжно зарекомендовали себя и стали фундаментом для ряда основополагающих отраслевых методических рекомендаций по радиационной защите.

Большое количество оригинальных научных работ опубликовано В.Ф. Хохряковым лично и в соавторстве в отечественных и зарубежных научных журналах.

Валентин Фёдорович входил в состав редакционной коллегии журнала "Вопросы радиационной безопасности" с первых дней создания журнала и много сделал для повышения научного уровня и имиджа нашего издания. Последняя его работа была опубликована в нашем журнале летом 2023 г. и была приурочена к 95-летию Валентина Фёдоровича.

За свою трудовую деятельность В.Ф. Хохряков отмечен рядом государственных и ведомственных наград, в том числе Орденом Почета, медалью Ордена "За заслуги перед отечеством" II степени, медалями "За доблестный труд", "В ознаменование 100-летия со дня рождения В.И. Ленина", "Ветеран труда". Он являлся лауреатом Государственной премии СССР, Отличником здравоохранения, Ветераном атомной энергетики и промышленности.

*Память о Валентине Фёдоровиче Хохрякове будет жить в наших сердцах.*

## РАДИОХИМИЧЕСКОМУ ЗАВОДУ – 75 ЛЕТ

75 лет назад в декабре 1948 г. был пущен в эксплуатацию радиохимический завод. С этого момента началась история промышленной прикладной радиохимии в нашей стране.

В истории завода можно отметить пять этапов его развития.

1. Строительство и пуск в эксплуатацию 22.12.1948 г. завода "Б" (завод 25) по производству плутония для первой атомной бомбы.

2. Строительство, пуск в эксплуатацию в 1952–1959 гг. завода "ДБ" (дублер завода "Б").

3. Объединение заводов "Б" и "ДБ" в одно структурное подразделение – завод 235 – 1 октября 1971 г.

4. Реконструкция завода "Б" и создание на его основе завода "РТ-1", пуск которого осуществлен 21 марта 1977 г.

5. Включение в мае 1997 г. в состав завода цеха 3. Этот цех, введенный в строй 19 июня 1955 г., был первым в стране промышленным объектом, выпускающим радиоизотопную продукцию. В таком итоговом составе радиохимический завод подошел к своему 75-летию.

Сама история предопределила удел радиохимического завода – быть первым. Здесь наработана первая на континенте промышленная партия концентрата плутония. Здесь заработала первая в стране экстракционная технология переработки облученных материалов, причем впервые в мире в промышленном варианте был использован тяжёлый хлорированный разбавитель для трибутилфосфата.

Впервые в стране освоена технология переработки отработавшего ядерного топлива атомных станций, высокообогащённого топлива транспортных судовых реакторных установок и успешно осуществлено замыкание ядерного топливного цикла по урану. Завод первым в СССР осуществил промышленную переработку облучённого металлического тория, открыв перспективы реализации ториевого топливного цикла.

На заводе впервые получены промышленные партии чистого нептуния, стартового препарата для производства плутония-238, изотопа, позволившего начать в СССР изучение дальнего космоса. Впервые в мире были наработаны крупные промышленные партии концентрата чистого технеция, впервые в стране проведены опытно-промышленные операции выделения реакторного палладия.

В 1987 г. пущен крупнейший в мире комплекс остекловывания ЖРО, впервые реализована промышленная технология варки высокоактивного алюмофосфатного стекла. В 1996 г. введена в эксплуатацию первая в мире опытно-промышленная установка и технология фракционирования жидких высокоактивных отходов. Масштабы фракционирования кислых ВАО до сих пор не имеют сколько-нибудь близких аналогов.

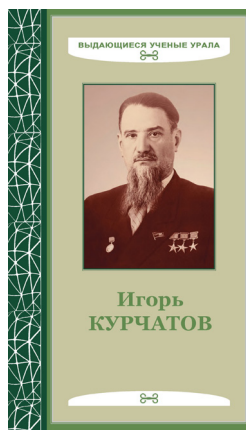
На радиохимическом заводе впервые в стране освоена технология промышленной наработки диоксида плутония керамического качества. Это, после пуска в Железногорске производства по фабрикации уран-плутониевого смешанного ядерного топлива, позволило замкнуть ядерный топливный цикл не только по урану, но и по плутонию.

Завод 235 является единственным в мире универсальным предприятием по переработке ОЯТ. В настоящее время радиохимический завод способен перерабатывать практически любое по химическому составу топливо – урановое оксидное и металлическое, уран-плутониевое, интерметаллидное, уран-молибденовое, уран-циркониевое, уран-бериллиевое, карбидное, нитридное и т.п., а после ввода в эксплуатацию строящегося комплекса АМБ сможет перерабатывать топливо практически любого габаритного размера.

Все упомянутое свидетельствует о том, что завод 235 как ранее, так и сейчас является флагманом отечественной радиохимии, одним из ведущих предприятий ядерно-промышленного комплекса России.

*Уважаемые заводчане, редакция журнала "Вопросы радиационной безопасности" поздравляет вас с праздником – славным 75-летним юбилеем. Желаем всем вам оптимизма, веры в безграничные возможности человека, творческих успехов и новых встреч на страницах нашего журнала.*

## НОВЫЕ КНИГИ



В сентябре 2023 г. Екатеринбургским издательством "Банк культурной информации" в серии "Выдающиеся ученые Урала" выпущена научная монография "Игорь Курчатов: уральский след в науке". Выпуск посвящен 120-летию со дня рождения выдающегося советского и российского ученого-физика, академика Игоря Васильевича Курчатова.

Монография написана коллективом ученых-историков разных поколений, объединённых чувством большого уважения к деятельности и личности великого учёного и сына России. Соавторами выступили: доктор исторических наук Раиса Васильевна Кузнецова, директор мемориального Дома-музея И.В. Курчатова Национального исследовательского центра "Курчатовский институт" в период с 1982 по 2020 гг. (Москва); кандидат исторических наук Виктор Николаевич Кузнецов, старший научный сотрудник Института истории и археологии Уральского отделения Российской академии наук (Екатеринбург); кандидат исторических наук Олег Юрьевич Жарков, руководитель группы фондов научно-технической документации

ФГУП "Производственное объединение "Маяк" (Озёрск, Челябинская область) и кандидат исторических наук Николай Александрович Антипин, заместитель директора Объединённого государственного архива Челябинской области (Челябинск).

Научное исследование выполнено на основе традиционных и современных методов исторического анализа отчасти ранее известных биографических данных, но переосмысленных, уточнённых с точки зрения сегодняшних новых знаний, а также вновь выявленных событий и фактов.

Несомненной ценностью монографии является использование авторами подлинных архивных материалов центральных, государственных и ведомственных архивов, а также уникальных документов личного происхождения, находящихся на хранении в доме-музее И.В. Курчатова в Москве. Архивные документы были не только профессионально изучены и систематизированы. Авторы предоставляют возможность ученым и общественности ознакомиться с впервые введёнными в научный оборот историческими источниками.

Главы книги содержат эксклюзивный исторический материал, основанный на системном изучении архивных источников, ранее недоступных для науки и общества по причине длительного засекречивания. Сравнительно недавно эти архивные документы были рассекречены.

Монография замечательно иллюстрирована. В книге использованы ранее неизвестные фотографии из фондов Центрального архива Государственной корпорации по атомной энергии "Росатом", группы фондов научно-технической документации ФГУП "ПО "Маяк", Объединённого государственного архива Челябинской области, муниципального казённого учреждения "Муниципальный архив Озёрского городского округа", дома-музея И.В. Курчатова, других источников. В приложении даны копии архивных документов, научно-справочный аппарат: указатель имен, список литературы, сокращений, аббревиатур.

Данная монография представляет собой комплексное и всесторонне законченное научное исследование. Издание удовлетворит потребности широкого круга читателей, интересующихся вопросами становления и развития И.В. Курчатова как учёного и гражданина, вся жизнь и деятельность которого были неразрывно связаны с самыми трагическими и героическими периодами истории советского государства, созданием ядерного щита СССР, началом мирного использования атомной энергии во благо человечества.

# RADIATION SAFETY PROBLEMS

Scientific Journal

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

№ 4 (112) 2023

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,  
Ye.A. Demchenko (publ. manager), M.V. Zhukovsky, I.A. Ivanov, S.N. Kalmykov,  
P.V. Kozlov, D.N. Kolupaev, N.A. Koshurnikova, A.I. Kryshev, A.A. Kuvaev,  
I.I. Linge, M.V. Logunov, B.F. Myasoedov, V.N. Pozolotina, Ye.A. Pryakhin,  
S.A. Romanov, M.E. Sokolnikov, Ye.I. Tolstykh, S.S. Utkin, A.P. Khomyakov,  
Ye.A. Shishkina, S.V. Yudin, Yu.T. Yuldashev

## CONTENTS

### 1. RADIATION SAFETY

- Yu.V. Kozina, I.A. Istomin, N.A. Kuznetsova, N.I. Valova, M.A. Snegiryova. Laser Decontamination of Radioactive Metal Waste 3
- O.A. Sakhnenko, N.A. Kuznetsova, Ye.V. Pipkov, N.R. Gabbasova. Investigation of Decontamination Capability of Cleaning Agents from the Product Line Vybor under Conditions of the Radiochemical Plant 12

### 2. RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT

- L.G. Yelagina, M.B. Remizov, P.V. Kozlov, I.I. Dementyeva. Creation of the Automated Database as Part of the Methodological Basis for the System of Characterization of the Vitrified HLW Accumulated at the Mayak PA 20
- P.V. Kozlov, S.M. Shaydullin, R.Ya. Akhtyamov, R.M. Akhmedyanov, K.A. Feoktistov, D.V. Markova. Investigation of Advanced Compositions of Dry Mixture for Solidification of the Liquid Phase of Alkaline High-Level Waste Stocks 28
- V.Ye. Yermeyashev, G.G. Korinevskaya, M.A. Rassomakhin, D.Ye. Zhivulin, S.M. Shaydullin, P.V. Kozlov. Analysis of Maximum Zirconium Solubility in Aluminoborosilicate Glasses 41

### 3. RADIOCHEMICAL TECHNIQUES OF SNF REPROCESSING

- A.S. Kornilov, S.S. Poglyad, N.O. Pozigun, V.A. Boldakov, O.S. Dmitrieva, V.A. Moskalyonova. Uranium Stripping with Ammonium Acetate and Ammonium Formate 50



<b>CONTENTS</b>	
<b>4. RADIOACTIVE WASTE &amp; ENVIRONMENT</b>	
<b>Yu.G. Mokrov.</b> Distribution of Zirconium-95 in Bottom Sediments of the Techa River in 1952–1955	55
<b>Yu.G. Mokrov.</b> Radioactive Contamination of Riverside Areas as a Result of Water Aerosol Transfer from the Techa River Water Surface	69
<b>5. RADIATION EXPOSURE &amp; HUMAN HEALTH</b>	
<b>I.S. Kuznetsova.</b> Radiogenic Risk of Mortality from Malignant Neoplasms Among Mayak Workers Employed in Different Periods of the Plant Operation	82
<b>6. INFORMATION &amp; PERSONALIA</b>	
Ilyin L.A.	90
Khokhryakov V.F.	92
75 <sup>th</sup> Anniversary of the Radiochemical Plant	93
New books	94
<b>CONTENTS</b>	<b>95</b>
<b>ABSTRACTS</b>	<b>97</b>
<b>Information about Authors</b>	<b>101</b>
<b>Contents of the Journal for 2023</b>	<b>104</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

### **LASER DECONTAMINATION OF RADIOACTIVE METAL WASTE**

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

The paper addresses the possibility of decontamination of radioactively contaminated metal surfaces through the use of laser treatment. It has been established that the laser treatment makes it possible to convert waste metal from the low-level waste category to the category of very low-level waste. It has been demonstrated that to prevent contamination of the working area and equipment with radioactive aerosols it is appropriate to use a local off-gas system.

**KEYWORDS:** DECONTAMINATION, DECONTAMINATION FACTOR, RADIOACTIVE CONTAMINATION, LASER SURFACE TREATMENT, LASER RADIATION PARAMETERS

### **INVESTIGATION OF DECONTAMINATION CAPABILITY OF CLEANING AGENTS FROM THE PRODUCT LINE VYBOR UNDER CONDITIONS OF THE RADIOCHEMICAL PLANT**

**O.A. Sakhnenko, N.A. Kuznetsova, Ye.V. Pipkov, N.R. Gabbasova**  
**FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia**

The study is focused on decontamination capability of industrial cleaning agents of Vybor-K and Vybor-KS types from the product line Vybor manufactured by IP Kembrin (Perm) as applied to decontamination of lining and structural materials from  $\alpha$ - and  $\beta$ -contaminating nuclides in the presence of ultrasound and without it. The corrosive action of the cleaning solutions on the stainless and carbon steel has also been evaluated. The paper presents the findings of the laboratory analyses and pilot testing aimed at decontaminating the process equipment of the radiochemical plant.

**KEYWORDS:** DECONTAMINATION, CLEANING AGENT, CORROSIVE ACTION, DECONTAMINATION FACTOR, EFFECTIVENESS, RADIOACTIVE CONTAMINATION

### **CREATION OF THE AUTOMATED DATABASE AS PART OF THE METHODOLOGICAL BASIS FOR THE SYSTEM OF CHARACTERIZATION OF THE VITRIFIED HLW ACCUMULATED AT THE MAYAK PA**

**L.G. Yelagina, M.B. Remizov, P.V. Kozlov, I.I. Dementyeva**  
**FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia**

To support the task of evaluating and substantiating safety of land disposal of vitrified high-level waste (HLW) accumulated at the Mayak PA, a system for characterization of vitrified HLW supported by the database containing the relevant vitrified HLW data has been created. The database contains all available analytical data related to vitrified HLW. The computations have been performed on the basis of the integral algorithm developed to evaluate content of the radiologically significant radionuclides in the packages with vitrified HLW.

**KEYWORDS:** VITRIFIED HIGH-LEVEL WASTE, AUTOMATED DATABASE, RADIOLOGICALLY SIGNIFICANT RADIONUCLIDES, VITRIFIED HLW BATCH

## **INVESTIGATION OF ADVANCED COMPOSITIONS OF DRY MIXTURE FOR SOLIDIFICATION OF THE LIQUID PHASE OF ALKALINE HIGH-LEVEL WASTE STOCKS**

**P.V. Kozlov, S.M. Shaydullin, K.A. Feoktistov, D.V. Markova**

**FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia**

**R.Ya. Akhtyamov, R.M. Akhmedyanov**

**LLC UralNIISTrom, Chelyabinsk, Russia**

The paper presents findings of the investigation focused on characteristics of cement mortars and compounds produced in the course of development of the process for solidification of liquid phase of alkaline high-level waste (HLW) accumulated at the Mayak PA. Only the materials currently available in the domestic market were used as constituents of dry mixtures during testing. Model non-radioactive cement mortars were used to determine such characteristics as spreadability, water loss, time of final setting and heat generation. The compounds were tested for compressive strength, freeze-thaw durability and water resistance.  $^{137}\text{Cs}$  leaching rate was evaluated for the cement compounds with real solidified high-level solutions. The investigation developed a composition that ensured compliance of the solidified radioactive waste to the entire range of regulations and technological requirements in the event of placing the compound in the containers with limited volume (such as NZK containers).

**KEYWORDS:** LIQUID RADIOACTIVE WASTE, DRY MIXTURES, LIME-SLAG BINDING SYSTEMS, BENTONITE, VERMICULITE, SOLIDIFICATION, CEMENT COMPOUNDS, PHYSICAL-MECHANICAL PROPERTIES, LEACHING

## **ANALYSIS OF MAXIMUM ZIRCONIUM SOLUBILITY IN ALUMINOBOROSILICATE GLASSES**

**V.Ye. Yermiyashev<sup>1,2</sup>, G.G. Korinevskaya<sup>1,2</sup>, M.A. Rassomakhin<sup>2</sup>, D.Ye. Zhivulin<sup>1</sup>,**

**S.M. Shaydullin<sup>3</sup>, P.V. Kozlov<sup>3</sup>**

**<sup>1</sup>FSAEIHE South Ural State University, Chelyabinsk, Russia**

**<sup>2</sup>FSBIS South Ural Federal Scientific Center of Mineralogy and Geoecology, Ural Branch of the Russian Academy of Sciences, Miass, Russia**

**<sup>3</sup>FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia**

Zirconium is one of the critical components of high-level waste incorporated in glass and affecting its properties. Some zirconium originates from partial corrosion failure of fuel element claddings in the course of SNF reprocessing. Some of it comes from dissolution in the glass melt of zirconium-bearing refractory material of the glass-melting furnace. Zirconium is also present in the SNF as a fission product. This investigation has used an electronic microscopic technique to study zirconium dissolution in aluminoborosilicate glasses developed as a matrix material for immobilization of high-level radioactive waste by means of vitrification. Zirconium distribution between the glass structure and crystalline phases has been studied to make a conclusion about the optimum mixture ratio corresponding to maximum zirconium content in glass-containing part of matrix materials. Findings of the investigation seek to adjust parameters for the synthesis of matrix glass-containing borosilicate materials applied for immobilization of zirconium-bearing high-level radioactive waste.

**KEYWORDS:** RADIOACTIVE WASTE, VITRIFICATION, MATRIX MATERIALS, ALUMINOBOROSILICATE GLASS, ZIRCONIUM, SOLUBILITY

## **URANIUM STRIPPING WITH AMMONIUM ACETATE AND AMMONIUM FORMATE**

A.S. Kornilov<sup>1</sup>, S.S. Poglyad<sup>1,2</sup>, N.O. Pozigun<sup>1</sup>, V.A. Boldakov<sup>1</sup>, O.S. Dmitrieva<sup>1</sup>,  
V.A. Moskalyonova<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Research Institute of Atomic Reactors, Dimitrovgrad, Russia

<sup>2</sup>Dimitrovgrad Engineering and Technical Institute (branch of National Research Nuclear University MEPhI), Dimitrovgrad, Russia

The paper discusses stripping agents for extraction of uranium from a 30% TBF solution in decane after the extraction stage with a saturation of 110–116 g/l. The paper also studies uranyl nitrate solubility in solutions of ammonium acetate and ammonium formate, and the uranium distribution coefficients as a function of concentrations of ammonium acetate and ammonium formate. Comparative tests have been performed to evaluate effectiveness of the stripping agents. The authors draw a conclusion on applicability of ammonium acetate and ammonium formate as uranium stripping agents.

KEYWORDS: EXTRACTION, STRIPPING, AMMONIUM ACETATE, AMMONIUM FORMATE, TRIBUTYL PHOSPHATE

## DISTRIBUTION OF ZIRCONIUM-95 IN BOTTOM SEDIMENTS OF THE TECHA RIVER IN 1952–1955

Yu.G. Mokrov

FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia

The work is aimed at reconstructing the parameters for source of radiation exposure of individuals who lived on the Techa River banks in 1949–1956, and covers the study of migration of gamma emitting nuclides (specifically zirconium-95 (<sup>95</sup>Zr) and niobium-95 (<sup>95</sup>Nb)) in the river system. <sup>95</sup>Zr is known by its abnormally high sorption properties and is almost completely and irreversibly sorbed by bottom sediments and suspended matter even at the point of discharge of liquid radioactive waste (LRW). Therefore, it can migrate further only with solid runoff. Previous studies show that large-scale radioactive contamination of the river occurred in a relatively short period of time from July to October 1951, when the water flow rate in the upper reaches varied from 8 to 30 m<sup>3</sup>/s. Such behavior of water runoff caused intensive stirring up (erosion) of the most polluted bottom sediments in the area of the LRW discharge point, transfer and deposition of the formed suspensions all along the river. After October 1951, when the discharge of LRW into the river decreased by 2–3 orders of magnitude, <sup>95</sup>Zr was distributed in the bottom sediments only by means of radioactive decay and transfer of suspended load and bottom sediments. The paper discusses features of the methods used in the 1950s for measuring specific activity of the sum of beta emitting nuclides,  $A_{\Sigma}$  (μCi/kg), and the sum of gamma emitting nuclides,  $M_{\Sigma}$  (μg-equivalent of Ra/kg). It shows that using the ratio  $R_{\Sigma} = M_{\Sigma} / A_{\Sigma}$  as a criterion provides new information about <sup>95</sup>Zr content in the bottom sediments and reliably identifies samples of the bottom sediments with a predominant contribution of <sup>95</sup>Zr ( $M_{Zr}$ ) and <sup>95</sup>Nb ( $M_{Nb}$ ) in  $M_{\Sigma}$  from the entire set of archival data. Analysis of the results of archival measurements of specific activity of the bottom sediment samples taken from various locations of the river in 1952, 1954 and 1955 using criterion  $R_{\Sigma} = M_{\Sigma} / A_{\Sigma}$  allows estimating the values of  $M_{\Sigma} \approx M_{Zr} + M_{Nb}$  and recalculating these results taking into account radioactive decay as of November 1, 1951. The results of measurements of  $M_{\Sigma}$  performed in 1952, 1954 and 1955 and corrected to November 1, 1951 turn out to be close to each other, although the overall decrease in activity due to radioactive decay reaches ~10 million times. The author shows that as of November 1951 <sup>95</sup>Zr specific activity in the bottom sediments remained almost constant all along the river. These results provide a new vision to the task of reconstructing external radiation doses for individuals living on the banks of the Techa River.

KEYWORDS: TECHA RIVER, BETA AND GAMMA EMITTING NUCLIDES, NIOBIUM-95, ZIRCONIUM-95, GAMMA ACTIVITY EQUIVALENT, END-WINDOW COUNTER, BETA RADIATION ABSORPTION COEFFICIENT, SORPTION CAPACITY

## **RADIOACTIVE CONTAMINATION OF RIVERSIDE AREAS AS A RESULT OF WATER AEROSOL TRANSFER FROM THE TECHA RIVER WATER SURFACE**

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

The investigation is devoted to reconstruction of the source-term parameters at the Techa River for the period of 1949–1956 and deals with the problem of migration of gamma-emitting nuclides, zirconium-95 ( $^{95}\text{Zr}$ ) and niobium-95 ( $^{95}\text{Nb}$ ), in particular, in the river system. The paper presents archival data (1951), such as measured specific activity of the sum of beta-emitting nuclides,  $A_{\Sigma}$  ( $\mu\text{Ci/kg}$ ), in soil and vegetation at the riverside areas of the Techa River not flooded by the flood waters. It has been demonstrated that radioactive contamination of the riverside areas is not associated with discharges into the atmosphere from the Mayak stacks, and the results of measurements do not follow a generally accepted idea of the contamination distribution pattern. For example, it has been shown that:

- contamination of the riverside soil and vegetation with the distance from the waterside and along the river is characterized by nonmonotonic (spotty) pattern and absolute specific activities of the sum of beta-emitting nuclides within one order of magnitude are constant all over the territory;
- distribution of specific activity of the sum of beta-emitting nuclides across the soil layer to a depth of up to 0.5 m was practically uniform and in some cases it increased with depth;
- contamination of the vegetation was external (leafy part) and internal (root part) and in a number of cases specific activity of the sum of beta-emitting nuclides in the stems and leaves was lower than that in the roots.

It has been assumed that the soil and vegetation were radioactively contaminated with  $^{95}\text{Nb}$  as a result of wind transfer of water aerosol from the river water surface. Model calculations have been performed to explain unusual pattern of all distributions and to evaluate average (over the summer of 1951) activity concentration of  $^{95}\text{Nb}$  in the river water.

**KEYWORDS:** TECHA RIVER, RIVERSIDE AREAS, WATER AEROSOL, NIOBIUM-95, ZIRCONIUM-95, SOIL AND VEGETATION CONTAMINATION, BETA-RADIATION ABSORPTION COEFFICIENT, SORPTION CAPACITY

## **RADIOGENIC RISK OF MORTALITY FROM MALIGNANT NEOPLASMS AMONG MAYAK WORKERS EMPLOYED IN DIFFERENT PERIODS OF THE PLANT OPERATION**

**I.S. Kuznetsova**  
**Southern Urals Biophysics Institute, Federal Medical Biological Agency of Russia, Ozyorsk, Russia**

The paper deals with comparative epidemiological analysis of the radiogenic risk of mortality from solid malignant neoplasms among Mayak workers employed in different periods of the plant operation. It is shown that the estimates of the radiogenic risk of mortality from solid malignant neoplasms (with the exception of organs of main deposition of plutonium) for personnel employed during the early years of the plant operation (1948–1958) and during the years of its routine operation (1959–1982) do not differ and give 0.2 per 1 Gy. In the first sub-cohort (1,596 deaths) 176.1 cases (11.0 %) are associated with occupational radiation exposure. In the second sub-cohort (802 deaths) only 20.3 cases (2.5 %) can be attributed to radiation-induced ones.

**KEYWORDS:** MALIGNANT NEOPLASMS, RADIOGENIC RISK, OCCUPATIONAL EXPOSURE



**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, академик РАН
Козлов Павел Васильевич	— кандидат технических наук
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
Позолотина Вера Николаевна	— доктор биологических наук
Пряхин Евгений Александрович	— доктор биологических наук, профессор
Романов Сергей Анатольевич	— кандидат биологических наук
Сокольников Михаил Эдуардович	— доктор медицинских наук
Толстых Евгения Игоревна	— доктор биологических наук
Уткин Сергей Сергеевич	— доктор технических наук
Хомяков Анатолий Павлович	— доктор технических наук
Хохряков Валентин Федорович	— доктор биологических наук, профессор
Шишкина Елена Анатольевна	— доктор биологических наук
Юдинцев Сергей Владимирович	— доктор геолого-минералогических наук, член-корреспондент РАН
Юлдашев Юрий Тахирович	— представитель учредителя

**Сведения об авторах статей:**

Ахмедьянов Ренат Магафурович	– к.т.н., заместитель генерального директора по научной работе
Ахтямов Рашид Якубович	– к.т.н., генеральный директор
Болдаков Валентин Андреевич	– младший научный сотрудник, <i>valentineandrbol@yandex.ru</i>
Валова Надежда Игоревна	– инженер-технолог завода 20
Габбасова Надежда Руслановна	– лаборант радиохимического анализа ЦЗЛ, т. 8 (35130) 37193
Дементьева Ирина Ивановна	– инженер-технолог лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. 8 (35130) 37211, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Дмитриева Ольга Сергеевна	– начальник лаборатории радиохимических технологий Отделения Радиохимических Технологий, т. 8 (84235) 79802, <i>osdmitrieva@niiar.ru</i>
Елагина Лариса Геннадьевна	– инженер-химик лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. 8 (35130) 33844, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Еремяшев Вячеслав Евгеньевич	– д.х.н., старший научный сотрудник Управления научной и инновационной деятельности ФФГАОУ ВО "ЮУрГУ (НИУ)"; ведущий научный сотрудник лаборатории экспериментальной минералогии и физики минералов Института минералогии УрО РАН, <i>vee-zlat@mineralogy.ru</i>
Живулин Дмитрий Евгеньевич	– младший научный сотрудник, т. +7 (3513) 663358, <i>mikleboy@list.ru</i>
Истомин Игорь Александрович	– инженер-технолог лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. 8 (35130) 33782, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Козина Юлия Войтеховна	– инженер-технолог лаборатории специального материаловедения ЦЗЛ, т. 8 (35130) 37182, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Козлов Павел Васильевич	– к.т.н., доцент, начальник исследовательской лаборатории (по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов) ЦЗЛ, т. 8 (35130) 33269, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Кориневская Галина Геннадьевна	– инженер-исследователь, <i>Zherebtsov_da@yahoo.com</i>
Корнилов Александр Степанович	– старший научный сотрудник, т. 8 (84235) 79802
Кузнецова Ирина Сергеевна	– к.б.н., старший научный сотрудник отдела эпидемиологии, т. 8 (35130) 73076, <i>kuznetsova@subi.su</i>

Кузнецова Наталья Анатольевна	—	начальник группы исследовательской лаборатории ЦЗЛ, т. 8 (35130) 37182, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Маркова Дарья Владимировна	—	инженер-технолог лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. 8 (35130) 33782, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Мокров Юрий Геннадьевич	—	д.т.н., советник генерального директора по науке и экологии, т. 8 (35130) 33304, <i>mokrov@po-mayak.ru</i>
Москальонова Валерия Андреевна	—	студент, т. 8 (84235) 79802, <i>valeri131101@inbox.ru</i>
Пипков Егор Вячеславович	—	заместитель начальника цеха по технологическому обеспечению — начальник группы технологического обеспечения производства и спецучёта завода 235
Погляд Сергей Степанович	—	эксперт по научным разработкам Отделения Радиохимических Технологий, т. 8 (84235) 79801, <i>spoglyad@yandex.ru</i>
Позигун Наталья Олеговна	—	младший научный сотрудник, <i>n.pozigun@yandex.ru</i>
Рассомахин Михаил Алексеевич	—	младший научный сотрудник, т. +7 (3513) 298098 доб. 215, <i>leyla@mineralogy.ru</i>
Ремизов Михаил Борисович	—	ведущий инженер-технолог лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. 8 (35130) 33844, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Сахненко Ольга Анатольевна	—	инженер-технолог исследовательской лаборатории ЦЗЛ, т. 8(35130) 37193, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Снегирёва Мария Александровна	—	лаборант завода 20
Феоктистов Кирилл Алексеевич	—	инженер-технолог лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. 8 (35130) 37515, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Шайдуллин Сергей Минуллович	—	начальник группы лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. 8 (35130) 33203, <i>cpl@po-mayak.ru</i>

## СОДЕРЖАНИЕ ЖУРНАЛА ЗА 2023 ГОД

Содержание	Номер
К 75-летию юбилею Производственного объединения "Маяк"	2
К 70-летию юбилею ЮУриБФ	3
<b>1. ОБЩИЕ ВОПРОСЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ</b>	
Мелихова Е.М. МКРЗ готовит очередную ревизию системы радиационной защиты	1
Прозорова И.В., Попов Ю.А., Прозоров А.А., Беденко С.В. Интеграция алгоритма дифференциальной эволюции и кода MCNP для создания модели спектрометрического детектора	1
<b>2. РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ</b>	
Кузнецова Н.А., Орлова И.А., Сахненко О.А. Приоритет безопасности атомной отрасли – использование качественных средств индивидуальной защиты	1
Ефимов А.В., Соколова А.Б., Суслова К.Г. Основные итоги научно-практической деятельности Южно-Уральского института биофизики в области радиационной безопасности	3
Аладова Е.Е., Алдошин А.И., Финашов Л.В., Маров В.А., Романов Е.В. Мониторинг радиационной обстановки в зоне наблюдения ПО "Маяк"	3
Аладова Е.Е., Ефимов А.В., Алдошин А.И., Хорешко Л.Л. Реагирование на радиационные инциденты в зоне ответственности Южно-Уральского регионального аварийного медико-дозиметрического центра ФМБА России	3
Козина Ю.В., Истомин И.А., Кузнецова Н.А., Валова Н.И., Снегирёва М.А. Лазерная дезактивация металлических радиоактивных отходов	4
Сахненко О.А., Кузнецова Н.А., Пипков Е.В., Габбасова Н.Р. Результаты исследования дезактивирующей способности моющих средств серии "Выбор" в условиях радиохимического производства	4
<b>3. ОБРАЩЕНИЕ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ</b>	
Маркова Д.В., Феоктистов К.А., Козлов П.В., Панкратова О.М., Корнев С.В., Милютин В.В., Егорин А.М., Токарёв Э.А. Радиационная стойкость сорбентов, предназначенных для извлечения цезия из высокоактивных щелочных отходов	2
Иванов Н.П., Мармаза П.А., Шичалин О.О., Драньков А.Н., Каспрук Г.Д., Писарев С.М., Федорев А.Н. Извлечение Cs(I) и Sr(II) из жидких сред с помощью кристаллических титаносиликатов, получаемых путём гидротермального синтеза	2

<b>Содержание</b>	<b>Номер</b>
<b>Елагина Л.Г., Ремизов М.Б., Козлов П.В., Дементьева И.И.</b> Разработка автоматизированной базы данных для создания методических основ системы характеристики остеклованных ВАО, накопленных на ФГУП "ПО "Маяк"	4
<b>Козлов П.В., Шайдуллин С.М., Ахтямов Р.Я., Ахмедьянов Р.М., Феоктистов К.А., Маркова Д.В.</b> Исследование перспективных составов сухой смеси для цементирования растворной части накопленных щелочных высокоактивных отходов	4
<b>Еремяшев В.Е., Кориневская Г.Г., Рассомахин М.А., Живулин Д.Е., Шайдуллин С.М., Козлов П.В.</b> Исследование максимальной растворимости циркония в алюмоборосиликатных стёклах	4
<b>4. ОБРАЩЕНИЕ С ОТРАБОТАВШИМ ЯДЕРНЫМ ТОПЛИВОМ</b>	
<b>Погляд С.С., Дмитриева О.С., Безднякова Е.А., Романова О.В.</b> Оценка применимости керамики на основе бентонитовой глины для иммобилизации радиоактивных отходов пирохимической переработки ОЯТ	2
<b>Ремизова В.А., Бобров П.А.</b> Определение состава осадков, образующихся при фильтрации растворов от переработки облучённого ядерного топлива реактора БН-600	2
<b>5. РАДИОХИМИЧЕСКАЯ ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОЯТ</b>	
<b>Корнилов А.С., Погляд С.С., Позигун Н.О., Болдаков В.А., Дмитриева О.С., Москальцова В.А.</b> Резкстракция урана ацетатом и формиатом аммония	4
<b>6. РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ И ОКРУЖАЮЩАЯ СРЕДА</b>	
<b>Мокров Ю.Г.</b> Изучение параметров источника поступления радионуклидов активационного происхождения в реку Течу	1
<b>Городецкий В.Г., Трапезников А.В., Трапезникова В.Н., Коржавин А.В.</b> Сравнительная оценка дозовых нагрузок на ихтиофауну Обь-Иртышской речной системы и Белоярского водохранилища – водоёма-охладителя Белоярской АЭС	1
<b>Мокров Ю.Г.</b> Поведение ниобия-95 в водах реки Течи	2
<b>Позолотина В.Н., Антонова Е.В., Михайловская Л.Н.</b> Итоги многолетних радиоэкологических исследований наземных экосистем Восточно-Уральского радиоактивного заповедника	2
<b>Мокров Ю.Г.</b> Распределение циркония-95 в донных отложениях реки Течи в 1952–1955 годах	4
<b>Мокров Ю.Г.</b> Радиоактивное загрязнение прибрежных участков в результате уноса водного аэрозоля с акватории реки Течи	4



Содержание	Номер
<b>7. ОБЛУЧЕНИЕ И ЗДОРОВЬЕ ЧЕЛОВЕКА</b>	
<b>Атаманюк Н.И., Стяжкина Е.В., Перетыкин А.А., Обвинцева Н.А., Андреев С.С., Алдибекова А.Е., Тряпицына Г.А., Пряхин Е.А.</b> Экспериментальная модель для оценки персонифицированной реакции ГСК человека на ионизирующее излучение <i>in vivo</i>	1
<b>Банникова М.В., Рыбкина В.Л., Азизова Т.В., Григорьева Е.С.</b> Заболеваемость немеланомным раком кожи у работников, подвергшихся профессиональному хроническому облучению	1
<b>Царева Ю.В., Окатенко П.В.</b> Структура смертности населения г. Озёрска за период 1948–2013 гг.	1
<b>Брагин Е.В., Банникова М.В., Азизова Т.В., Коробкин А.В.</b> Показатели заболеваемости железодефицитными анемиями у лиц, подвергшихся профессиональному хроническому облучению	1
<b>Хохряков В.Ф., Введенский В.Э.</b> Моделирование обмена $^{137}\text{Cs}$ в организме человека	2
<b>Рыбкина В.Л., Ослина Д.С., Азизова Т.В., Другова Е.Д., Адамова Г.В.</b> Факторы роста у лиц, подвергшихся профессиональному хроническому облучению	3
<b>Сокольников М.Э., Кабирова Н.Р., Окатенко П.В., Кошурникова Н.А., Царева Ю.В., Мартиненко И.А., Денисова Е.В.</b> Медико-дозиметрический регистр персонала производственного объединения "Маяк": Состояние и перспективы	3
<b>Тельнов В.И.</b> О некоторых демографических проблемах населения моногорода атомной промышленности Озёрска	3
<b>Сыпко С.А., Введенский В.Э., Бобов Г.Н.</b> Физико-химические свойства субмикронных аэрозолей $^{239}\text{Pu}$	3
<b>Востротин В.В., Янов А.Ю., Финашов Л.В.</b> Итоги научных исследований лаборатории радиационной безопасности № 6 Южно-Уральского института биофизики за 2012–2022 годы	3
<b>Кузнецова И.С.</b> Радиогенный риск смерти от злокачественных новообразований среди работников, нанятых в разные периоды деятельности ПО "Маяк"	4
<b>8. СООБЩЕНИЯ</b>	
<b>Логунов М.В.</b> Комментарии к статье Ю.Г. Мокрова " Поведение ниобия-95 в водах реки Течи"	2
<b>9. ИНФОРМАЦИЯ И ПЕРСОНАЛИИ</b>	
Ильину Леониду Андреевичу – 95 лет	1

<b>Содержание</b>	<b>Номер</b>
К 120-летию И.В. Курчатова и А.П. Александрова	1
Новые книги	1
Хохрякову Валентину Федоровичу – 95 лет	2
Линге И.И. – 70 лет	2
XXIII Всероссийская научно-практическая конференция "Дни науки ОТИ НИЯУ МИФИ – 2023"	2
IX форум-диалог "Национальный интерес, экология, безопасность"	2
Трапезников А.В.	3
Ильин Л.А.	4
Хохряков В.Ф.	4
Радиохимическому заводу – 75 лет	4
Новые книги	4

НАУЧНО-ПРАКТИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ  
Федерального государственного унитарного предприятия  
"ПРОИЗВОДСТВЕННОЕ ОБЪЕДИНЕНИЕ "МАЯК"  
**ВОПРОСЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ**  
**№ 4 (112) 2023**

Технический редактор И.Н. Моисеева  
Переводчики: О.А. Константинова, Д.Ю. Сезонова  
Корректоры: О.А. Константинова, Д.Ю. Сезонова, Н.П. Подольская, Е.В. Лупеха

*ПОДПИСКА – 2024*

С октября 2023 г. проводится подписная кампания  
на январь - июнь 2024 года по электронным каталогам:

**ЖУРНАЛ**  
**"Вопросы радиационной безопасности"**  
на сайте "Почта России" индекс **ПН083.**  
на сайте Урал Пресс индекс **014352.**

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 22.12.2023  
Выход в свет 10.01.2024

Тираж 70 экз.  
Цена договорная

Отпечатано в полиграфическом участке ФГУП "ПО "Маяк"  
Россия, 456780, Челябинская обл., г. Озёрск, ул. Ленина, 40