

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
№ 3 (107) 2022 г.

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

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

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

СОДЕРЖАНИЕ

1. ОБРАЩЕНИЕ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ

- Феоктистов К.А., Ремизова В.А., Бобров П.А., Слюнчев О.М. Разработка способов обращения с жидкими среднеактивными отходами радиохимического производства 3
- Бобров П.А., Слюнчев О.М., Силич Н.В., Старовойтов Н.П. Результаты опытно-промышленных испытаний по окислению органических соединений в радиоактивных суспензиях 12
- Милютин В.В., Некрасова Н.А., Козлов П.В., Маркова Д.В., Феоктистов К.А. Извлечение цезия из модельных растворов щелочных высокоактивных отходов на неорганическом ферроцианидном сорбенте марки "Ферсал" 20

2. РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ И ОКРУЖАЮЩАЯ СРЕДА

- Мокров Ю.Г., Мокров К.Ю., Кизуб П.А., Блохин П.А., Сошников В.М. Изучение параметров источника гамма-излучения в районе Метлинского пруда на реке Тече. Часть 1. Постановка задачи и предварительные вариантные расчёты 28
- Андронников П.А. Вывод из эксплуатации ЯРОО и реабилитация загрязнённых территорий на ФГУП "ПО "Маяк" за период 2016–2021 гг. 42

3. РАДИОХИМИЧЕСКАЯ ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОЯТ

- Лызлова Е.В., Глухова А.В., Конников А.В., Бирюкова М.А. Сорбционное выделение урана из азотнокислых технологических растворов с применением катионитов марки Purolite 53

СОДЕРЖАНИЕ

Старовойтов Н.П., Лукин С.А., Корнев С.В., Казаков В.А., Дудкин В.А., Козлов П.В., Бобров П.А. Разработка методики исследования теплофизических характеристик порошкообразных материалов методом ДСК	60
---	----

4. ОБЛУЧЕНИЕ И ЗДОРОВЬЕ ЧЕЛОВЕКА

Кривошапова Я.В., Возилова А.В. Исследование длины теломерных районов хромосом в Т-лимфоцитах облучённых лиц	71
---	----

Жунтова Г.В., Азизова Т.В., Григорьева Е.С., Заварухина Т.П., Фомин Е.П. Показатели заболеваемости раком желудка в когорте работников предприятия атомной промышленности	80
---	----

5. ИНФОРМАЦИЯ И ПЕРСОНАЛИИ

К 50-летию Сергея Владимировича Кривовичева	88
---	----

Ровный С.И.	89
--------------------	----

Дёгтева М.О.	90
---------------------	----

CONTENTS	91
-----------------	-----------

ABSTRACTS	93
------------------	-----------

Сведения об авторах статей	97
-----------------------------------	-----------

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 621.039.73

© 2022

РАЗРАБОТКА СПОСОБОВ ОБРАЩЕНИЯ С ЖИДКИМИ СРЕДНЕАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ РАДИОХИМИЧЕСКОГО ПРОИЗВОДСТВА

*К.А. Феоктистов, В.А. Ремизова, П.А. Бобров, О.М. Слюнчев
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Проведены испытания по очистке реальных жидких среднеактивных отходов осадительными и сорбционными методами. Экспериментально определена зависимость степени очистки раствора от α - и β -излучающих нуклидов от дозировки железа (II) и от концентрации MnO_2 , а также установлена зависимость степени очистки раствора от радионуклидов цезия в зависимости от концентрации $Ni_2Fe(CN)_6$. Сорбционную очистку осуществляли на анионитах АВ-17 и ВП-1АП в статическом режиме.

Установлено, что удаление карбонат-ионов из растворов содовых промывок повышает степень очистки от α - и β -излучающих нуклидов.

Показано, что за счёт комбинации методов можно уменьшить активность α -излучающих нуклидов на один-три порядка до значений 10^3 Бк/дм³, активность ^{137}Cs – на один-два порядка за счёт осаждения на ферроцианиде никеля.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: ЖИДКИЕ РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ, СООСАЖДЕНИЕ, ГИДРОКСИД ЖЕЛЕЗА (III), ДИОКСИД МАРГАНЦА, ФЕРРОЦИАНИД НИКЕЛЯ, СОРБЦИЯ, РУТЕНИЙ

Универсальным процессом переработки отработавшего топлива АЭС является экстракция трибутилфосфатом (ТБФ) радионуклидов из азотнокислых растворов. Экстракционный процесс включает следующие операции: совместную экстракцию U, Pu, Np; промывку экстракта от слабоэкстрагируемых осколочных нуклидов; восстановительную реэкстракцию Pu и Np с последующей отмывкой реэкстракта от U тем же экстрагентом; реэкстракцию U; содовую регенерацию экстрагента [1].

Одной из стадий экстракционного процесса является операция содовой промывки экстрагента. Содовые промывки экстрагента – это растворы, которые используют для промывки ТБФ с целью удаления продуктов его радиационно-химической деструкции: дибутилфосфата и монобутилфосфата.

До недавнего времени переработка содовых промывок производилась совместно с высокоактивными отходами (ВАО). За счёт совместной переработки содовых отмывок с ВАО сократилась кратность упаривания высокоактивных растворов и увеличилось поступление натрия на электропечь остекловывания. Это, в

свою очередь, привело к повышению количества стекла.

С целью снижения нагрузки на узел упаривания среднеактивных отходов (САО) и ВАО, повышения кратности упаривания жидких радиоактивных отходов (ЖРО) было предложено провести очистку содовых промывок с целью разгрузки частично очищенных растворов в систему спецканализации.

Другим вариантом решения существующей проблемы является отверждение солеобразующей группы среднеактивных растворов на созданном на радиохимическом производстве комплексе цементирования с предварительным удалением α -излучающих радионуклидов до допустимого уровня удельной активности в цементном компаунде – 10^5 Бк/кг [2].

В настоящее время для очистки низко- и среднеактивных ЖРО от радионуклидов широко применяются методы с использованием сорбционных и осадительных материалов различных типов. Чаще всего данные методы используются для очистки ЖРО от β - и γ -излучающих радионуклидов (цезий, стронций и т. д.), которые во многих случаях вносят

основной вклад в общую активность указанного вида ЖРО [2, 3].

Целью данной работы являлась разработка способов очистки среднеактивных содовых промывок экстрагента до уровня низкоактивных растворов (для их дальнейшей передачи в специальные водоёмы-хранилища) либо извлечения долгоживущих α -излучающих радионуклидов до уровня, позволяющего направлять среднеактивные растворы на цементирование.

ХАРАКТЕРИСТИКА СРЕДНЕАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

В качестве объектов для исследований использовали карбонатные (содовые) промывки экстрагента I и II ступени экстракции (далее содовый раствор), рафинат аффинажного отделения плутония и непутия, конденсат газоочистки.

Радиохимический и химический состав CAO, используемых в работе, приведён в табл. 1.

Для содовых промывок следует отметить высокое содержание азид-ионов, которые являются комплексонами ряда радионуклидов и потенциально взрывоопасны. Кроме того, содовые отмывки содержат следовые количества ТБФ. Концентрация карбонат-ионов лежит в диапазоне 20–40 г/л. Значение pH составляет от 8 до 9.

Особенностью раствора рафината аффинажного отделения плутония и непутия является наличие железа с концентрацией 0,129 г/л, а также присутствие HNO_3 – около 200 г/л.

Как видно из табл. 1, основной вклад в активность β - и γ -излучающих нуклидов в растворах вносят радионуклиды ^{106}Ru и ^{137}Cs . Активность α -излучающих нуклидов в основном определяется изотопами плутония и ^{241}Am .

Таблица 1

Радиохимический и химический состав CAO

Продукт	Объёмная активность, Бк/дм ³			Химический состав
	$\Sigma\alpha$, α -спектр	$\Sigma\beta$, β -спектр	γ -спектр	
Содовый раствор I	$1,0 \cdot 10^5$ $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am} - 8 \cdot 10^4$ $^{239}\text{Pu} - 2 \cdot 10^4$	$3,5 \cdot 10^7$ $^{106}\text{Ru} - 3,1 \cdot 10^7$	$^{137}\text{Cs} - 5,3 \cdot 10^5$ $^{106}\text{Ru} - 1,9 \cdot 10^7$ $^{125}\text{Sb} - 9,9 \cdot 10^4$	Pu – 2,57 мкг/л U – 0,012 г/л ТБФ <100 мг/л Na_2CO_3 – 26,5 г/л
Содовый раствор II	$6,8 \cdot 10^7$ $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am} - 5,6 \cdot 10^7$ $^{239}\text{Pu} - 1,2 \cdot 10^7$	$5,07 \cdot 10^6$ $^{106}\text{Ru} - 2,0 \cdot 10^5$ $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y} - 2,0 \cdot 10^5$ $^{99}\text{Tc} - 4,67 \cdot 10^6$	$^{137}\text{Cs} - 2,2 \cdot 10^5$ $^{134}\text{Cs} - 1,6 \cdot 10^4$ $^{106}\text{Ru} - 1,2 \cdot 10^5$	Pu – 3,7 мг/л U – 1,14 г/л ТБФ <100 мг/л Na_2CO_3 – 29,7 г/л N_3^- – 0,132 г/л
Рафинат аффинажа	$3,82 \cdot 10^7$ $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am} - 2,85 \cdot 10^7$ $^{239}\text{Pu} - 7 \cdot 10^6$ $^{237}\text{Np} - 1,8 \cdot 10^6$ $^{230}\text{Th} - 4,5 \cdot 10^5$ ^{226}Ra и др. – $3,8 \cdot 10^5$	$8,9 \cdot 10^7$ $^{137}\text{Cs} - 7,4 \cdot 10^5$ $^{99}\text{Tc} - 9,4 \cdot 10^7$ $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y} - 9,2 \cdot 10^5$ $^{106}\text{Ru} - 4,5 \cdot 10^5$	$^{137}\text{Cs} - 6,4 \cdot 10^5$ $^{134}\text{Cs} - 8,0 \cdot 10^3$ $^{241}\text{Am} - 3,9 \cdot 10^6$ $^{106}\text{Ru} - 5,1 \cdot 10^5$ $^{228}\text{Th} - 5,2 \cdot 10^4$ $^{233}\text{Pa} - 2,7 \cdot 10^5$	Tc – 0,036 г/л Fe – 0,129 г/л U <0,01 г/л NH_4 – 0,82 г/л SO_4^{2-} <0,1 г/л HNO_3 – 197 г/л
Конденсат газоочистки	$4,5 \cdot 10^6$ $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am} - 3,4 \cdot 10^6$ $^{239}\text{Pu} - 1,09 \cdot 10^6$ $^{244}\text{Cm} - 1,3 \cdot 10^4$	$5,5 \cdot 10^8$	$^{125}\text{Sb} - 1,5 \cdot 10^7$ $^{106}\text{Ru} - 1,7 \cdot 10^8$ $^{137}\text{Cs} - 1,6 \cdot 10^8$ $^{134}\text{Cs} - 3,1 \cdot 10^7$	Pu – 1,8 мг/л U <0,1 г/л F^- <0,1 г/л HNO_3 <10 г/л Cl^- – 0,11 г/л

МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

Удельную активность радионуклидов в пробах определяли радиометрическим и спектрометрическим методами.

Значения суммарной объёмной активности α - и β -излучающих радионуклидов в суспензии определяли радиометрическим методом анализа. Измерение pH растворов проводили с использованием иономеров Эксперт-001.

Определение катионов и анионов проводили в соответствии с действующими методиками предприятия.

Эффективность удаления радиоактивных примесей при проведении осадительных и сорбционных процессов определяли по значениям коэффициента очистки ($K_{оч}$) и степени очистки (S), которые рассчитывали по формулам:

$$K_{оч} = A_0 / A_{оч},$$

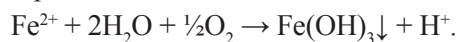
$$S = (1 - A_{оч} / A_0) \cdot 100 \%,$$

где A_0 , $A_{оч}$ – удельная активность радионуклида в исходном и очищенном растворе соответственно.

МЕТОДЫ ПОЛУЧЕНИЯ СОРБЕНТОВ

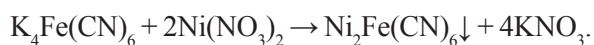
В работе очистка растворов проводилась с помощью методов коагуляции, осаждения и сорбции.

При коагуляции солями железа (II) протекает реакция:



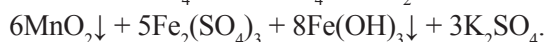
Осаждение гидроксида железа проводили в щелочной среде при pH=10–11. Требуемое значение pH достигали путём добавления в раствор гидроксида натрия. При коагуляции очистка от примесей происходит за счёт адсорбции ионных форм элементов, а также взвешенных и коллоидных частиц на развитой поверхности осадка. Наиболее полно осаждаются радионуклиды многовалентных легкогидролизуемых радионуклидов ^{95}Zr , ^{95}Nb , $\text{Pu}(\text{IV})$; $\text{Am}(\text{III})$, $\text{U}(\text{VI})$. Извлечение ^{90}Sr достигает значительной величины (до 90 %) только при pH>10,5 [4].

Сорбент ферроцианид никеля (ФЦН) получали прямым осаждением в водной среде гексацианоферрата железа-калия и нитрата никеля (II) по реакции:



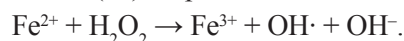
Осадок ФЦН селективно выделяет цезий из растворов. Осаждение проводили при pH<10, т.к. в щелочной среде осадок ФЦН растворяется.

Сорбент диоксид марганца (ДМ) получали прямым осаждением в водной среде перманганата калия и сульфата железа (II) по реакции:



В процессе образования осадка MnO_2 удаляются взвеси, коллоиды и происходит окисление органических веществ. Кроме того, происходит соосаждение α -излучающих нуклидов на осадке гидроксида железа.

Реакция Фентона – реакция пероксида водорода с ионами железа, которая используется для разрушения многих органических веществ. Для проведения реакции использовали 30 % H_2O_2 и раствор соли FeSO_4 . При этом ионы железа (II) окисляются пероксидом водорода до ионов железа (III) по реакции:



Из литературных данных известно, что рутений проявляет в своих соединениях восемь различных степеней окисления, вследствие чего бывает распределён по нескольким комплексным формам [5]. Второй особенностью химии рутения является способность к образованию нитрозокомплексов с азотсодержащими реагентами. Наличие π -связей между атомом рутения и группой NO ведёт к большому заряду на последней, благодаря чему становится возможным образование устойчивых комплексных ионов с таким слабообразующим лигандом, как ион NO_3^- . Получающиеся в таких реакциях группы RuNO^{3+} , RuNONO_3^{2+} , $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_2^+$ обладают высокой устойчивостью к различным химическим воздействиям [6].

В связи с невозможностью установления точных валентных форм рутения очистка проводилась разными методами: осадительными (коагуляция, химическое осаждение) и ионообменными.

Сорбционную очистку от рутения проводили в статических условиях на анионитах АВ-17 и ВП-1АП. Аниониты являются сильноосновными ионообменными смолами с

гелевой структурой. Функциональные группы обеспечивают ионообменные реакции с широким спектром органических и неорганических примесей, содержащихся в растворе.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В ходе работы было апробировано несколько схем обращения с САО, включающих очистку от цезия при осаждении ФЦН, от α -излучающих радионуклидов и рутения при коагуляции гидроксида железа – $\text{Fe}(\text{OH})_3$ (ГОЖ) и диоксида марганца – MnO_2 , смешанной пульпой ДМ и ГОЖ, осаждение сульфида натрия в разной последовательности при различных рН среды.

Проведены эксперименты по оценке влияния присутствия карбонат-ионов в содовом растворе I на очистку от радионуклидов. Отдельно изучалась зависимость очистки содового раствора I от α - и β -излучающих нуклидов в зависимости от концентрации ГОЖ и ДМ соответственно.

Для определения зависимости степени очистки раствора от цезия при осаждении ФЦН использовали конденсат газоочистки. Замена раствора связана с тем, что содовый раствор I имеет объёмную γ -активность по радионуклиду ^{106}Ru – $1,85 \cdot 10^7$ Бк/дм³, а по ^{137}Cs – $5,3 \cdot 10^5$ Бк/дм³, что могло бы отразиться на данных зависимости.

Схема проведения экспериментов заключалась в следующем. В aliquоту раствора САО или смеси растворов вводили реагенты для образования осадков ФЦН, ГОЖ, ДМ различных концентраций. Для очистки раствора от органических соединений добавляли активированный уголь. Разрушение органических соединений проводили по реакции Фентона.

Для образования пульпы ФЦН использовали растворы ферроцианида калия и нитрата никеля, пульпы ГОЖ – соли железа (III) и (II), пульпы ДМ – перманганат калия и восстановитель. Корректировку рН до нужного значения проводили при помощи растворов гидроксида натрия или азотной кислоты.

Для прохождения сорбции растворы выдерживали от 15 мин до 2 сут, затем проводили фильтрацию через фильтровальную бумагу "синяя лента" и анализировали.

В качестве одной из стадий исследовали очистку содового раствора I на сорбентах АВ-17, ВП-1АП в статическом режиме. Поскольку активность содового раствора I в основном определялась радионуклидом ^{106}Ru , особое внимание было уделено очистке именно от данного радионуклида.

В опытах по статической сорбции на АВ-17, ВП-1АП соотношение Т : Ж составляло 100 мг : 10 см³, время встряхивания – 15 мин за каждый час выдержки в течение рабочего дня, общее время выдержки – 1 сут. Перед испытаниями сорбенты АВ-17, ВП-1АП замачивали на сутки в 0,1 М азотной кислоте для набухания при соотношении Т : Ж = 1 г : 10 см³, затем промывали дистиллированной водой и высушивали.

В работе были предприняты попытки разрушить комплексные соединения рутения и стабилизировать элемент в четырёхвалентном состоянии, т. к. в данном состоянии рутений образует относительно мало комплексов и ни один из них не относится к катионным [7]. Согласно [8], в щелочной среде нитрозорутений образует растворимые сульфидные и полисульфидные комплексы, которые быстро и количественно сорбируются на анионитах.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты определения зависимости очистки содового раствора I от концентрации Fe, а также влияние присутствия карбонат-ионов в растворе представлены на рис. 1.

Разрушение карбонатных комплексов проводили путём добавления концентрированной HNO_3 до полного прекращения выделения углекислого газа. Эксперименты по оценке влияния присутствия карбонат-ионов в содовом растворе показали, что наличие карбонат-ионов существенно снижает очистку раствора от α -излучающих нуклидов и декарбонизация является необходимой стадией в процессах очистки содовых растворов.

Результаты очистки содового раствора I при осаждении ГОЖ и ДМ представлены на рис. 2. Опыт проводили с предварительным разрушением карбонат-ионов. В результате эксперимента коэффициент очистки от α -излучающих нуклидов составил 48, при этом

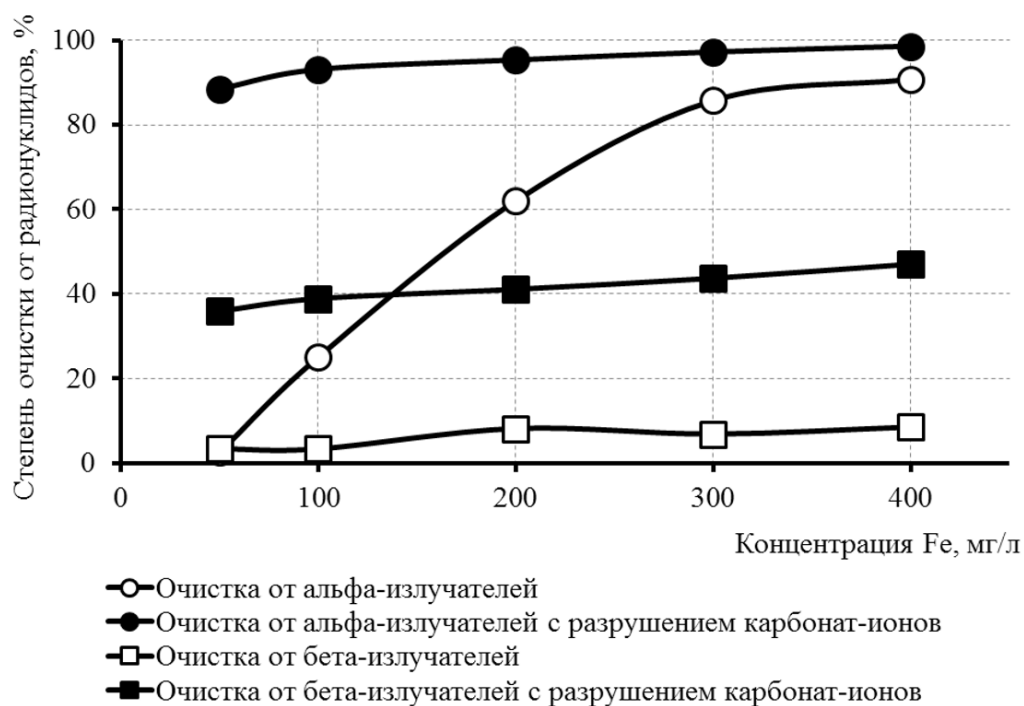


Рис. 1. Зависимость степени очистки содового раствора I от концентрации Fe(II)

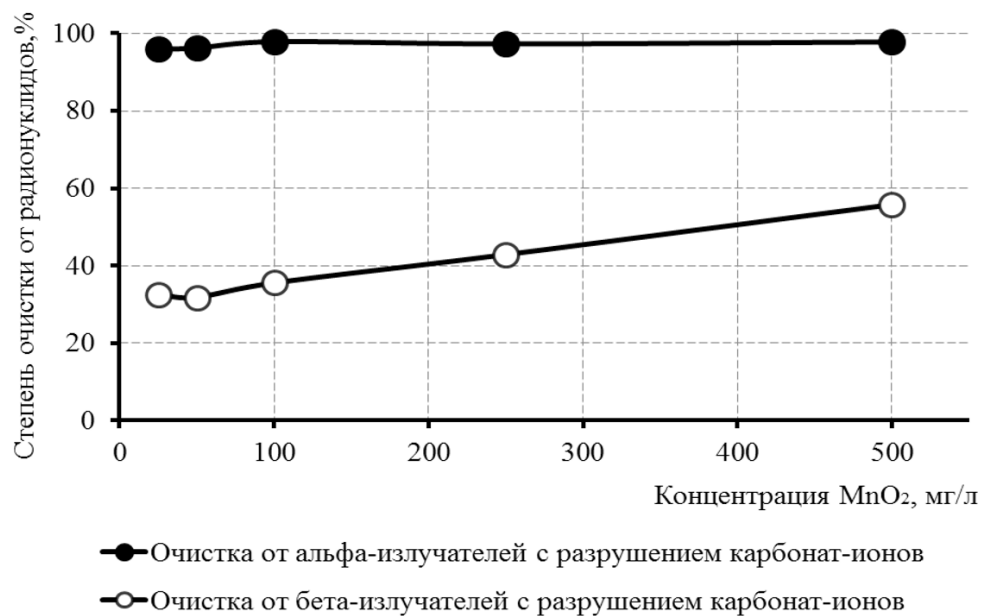


Рис. 2. Зависимость степени очистки содового раствора I от концентрации MnO₂

из раствора удаляются до 56 % β -излучающих нуклидов.

Для определения зависимости очистки раствора от цезия от концентрации ФЦН в аликвоту раствора конденсата газоочистки вносили необходимые для достижения заданной концентрации пульпы ФЦН растворы ферроцианида калия и нитрата никеля. Растворы выдерживали сутки, фильтровали и анализировали. Зависимость очистки от концентрации ФЦН представлена на рис. 3.

В результате эксперимента коэффициент очистки от ^{137}Cs составил от 16 до 90. Разница в степени очистки изотопов одного и того же элемента объясняется, скорее всего, загрязнением посуды в результате её многократного использования. Очевидно, что в силу разницы в периодах полураспада между ^{137}Cs (30 лет) и ^{134}Cs (2 года) загрязнение посуды в основном обусловлено изотопом ^{137}Cs . В результате при измерении объёмной активности получают завышенные показания по ^{137}Cs , а значит, заниженные по коэффициентам очистки. Таким образом, скорее всего, в эксперименте по ^{137}Cs получены более высокие коэффициенты очистки.

Результаты проведённых экспериментов по определению зависимостей приведены в табл. 2.

Результаты очистки растворов САО представлены в табл. 3.

При очистке растворов методом коагуляции коэффициенты очистки α -излучающих нуклидов составили: для содового раствора I – более 100, для содового раствора II – 235, для рафината аффинажа – 2390.

По результатам проведённых опытов коэффициенты очистки от рутения для содовых растворов составили всего от 1,8 до 2. Повысить коэффициент очистки содового раствора I от β -излучающих радионуклидов до 16 позволил опыт с многостадийной очисткой раствора при окислительной обработке реактивом Фентона и добавлении активированного угля. При этом были получены очищенные растворы с объёмной β -активностью $2 \cdot 10^6$ Бк/дм³.

Стоит отметить, что при коагуляции солями железа из раствора извлекаются преимущественно катионные формы, т. к. осадок $\text{Fe}(\text{OH})_3$ имеет избыточный отрицательный заряд при pH=10. Стабильный коэффициент очистки,

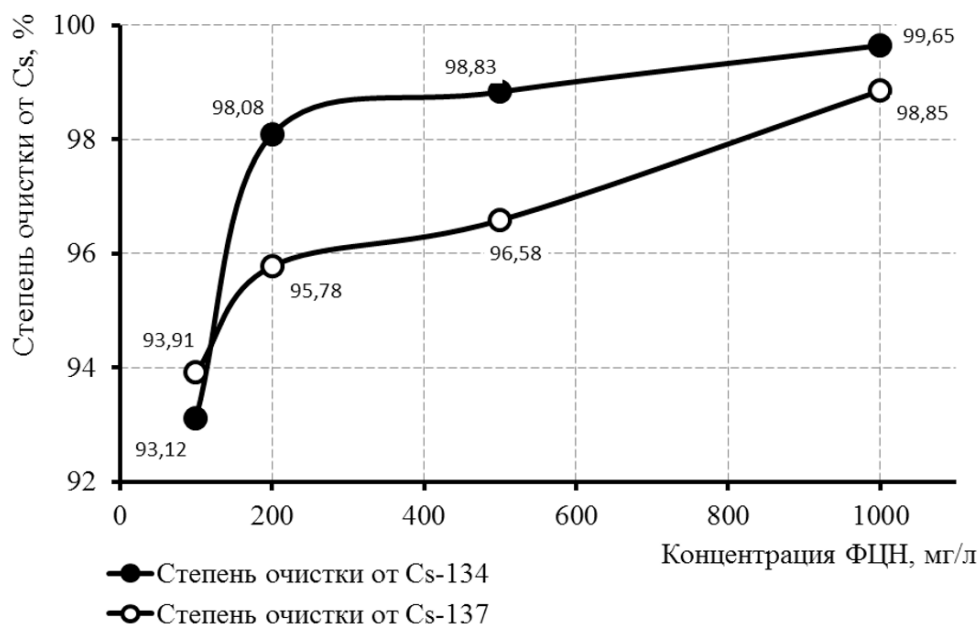


Рис. 3. Зависимость степени очистки конденсата газоочистки от концентрации ФЦН

Таблица 2

Результаты определения зависимостей степени очистки от концентрации различных осадителей

№	Продукт	Способ очистки	K_α	K_β	K_{Cs}
1	Содовый раствор I	осаждение пульпы $Fe(OH)_3$ 50–400 мг/л при pH=10 без декарбонизации	1–14	1,3–1,5	–
2		– разрушение CO_3^{2-} при pH=2; – осаждение пульпы ГОЖ с концентрацией 50–400 мг/л при pH=10	10–100	2,1–2,7	–
3		– разрушение CO_3^{2-} при pH=2; – осаждение пульпы ДМ с концентрацией 25–400 мг/л при pH=10	25–48	1,5–2,3	–
4	Конденсат газоочистки	осаждение пульпы ФЦН с концентрацией 100–1000 мг/л	–	–	16–90

Таблица 3

Результаты очистки САО

№	Продукт	Способ очистки	K_α	K_β	K_{Cs}	K_{Ru}
1	Содовый раствор I	– разрушение CO_3^{2-} при pH=2; – осаждение ФЦН 100 мг/л при pH=4; – осаждение смешанной пульпы ДМ 200 мг/л при pH=11	40	2,3	15,5	2
2		– разрушение CO_3^{2-} при pH = 2; – окисление $H_2O_2 + FeSO_4$; – сорбция органических веществ активированным углем 100 мг; – осаждение ФЦН 3 г/л; – осаждение смешанной пульпы ДМ 800 мг/л при pH=10,8	100	16	–	–
3	Содовый раствор II	– разрушение CO_3^{2-} при pH=2; – осаждение ФЦН 200 мг/л при pH=9; – осаждение пульпы ГОЖ 400 мг/л при pH=10	235	14	5	1,8
4	Рафинат аффинажа	– осаждение пульпы ФЦН 500 мг/л при pH=4,6; – осаждение смешанной пульпы ДМ и ГОЖ 500 мг/л	2390	1,16	12	2,5

полученный в результате большого количества проведённых опытов, свидетельствует о том, что около 50–70 % рутения находится в доступной для очистки форме. Однако другая его часть находится, вероятно, в комплексной или анионной форме, что затрудняет возможность его удаления из растворов.

В связи с этим были проведены опыты по сорбционной очистке содового раствора от анионных форм рутения. Результаты сорбцион-

ной очистки содового раствора I представлены в табл. 4.

Коэффициенты очистки от α -излучателей, полученные при статической сорбции на анионитах АВ-17 и ВП-1АП, составили от 1,1 до 72 в зависимости от условий эксперимента. Коэффициенты очистки от ^{106}Ru составили от 1,3 до 3,2. Максимальная степень очистки от ^{106}Ru составила 68 %. При этом β -активность раствора была снижена до $7,44 \cdot 10^6$ Бк/дм³.

Таблица 4

Результаты сорбционной очистки содового раствора I

№	Продукт	Способ очистки	K_α	K_β	K_{Cs}	K_{Ru}
1	Содовый раствор I	– разрушение CO_3^{2-} при pH=2; – сорбция в статике на анионите АВ-17	43	1,3	8,8	1
2		– разрушение CO_3^{2-} при pH=2; – сорбция в статике на анионите ВП-1-АП	72	1,7	21	1,3
3		– соосаждение рутения с 0,05 М Na_2S при pH=9; – сорбция в статике на анионите АВ-17	1,1	3,5	9	2,8
4		– разрушение CO_3^{2-} при pH=2; – соосаждение рутения с 0,05 М Na_2S при pH=9; – сорбция в статике на анионите АВ-17	1,8	3,4	23	2,6
5		– соосаждение рутения с 0,5 М Na_2S при pH=9; – сорбция в статике на анионите АВ-17	12	3,4	12	2,2
6		– соосаждение рутения с 0,5 М Na_2S в присутствии 0,5М S при pH=9; – сорбция в статике на анионите АВ-17	39	5	32	3,2

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены исследования по очистке САО осадительными и сорбционными способами. Получены зависимости степени очистки раствора от концентрации $Fe(II)$, MnO_2 и $Ni_2Fe(CN)_6$.

Показано, что предварительная декарбонизация содовых промывок существенно повышает очистку от долгоживущих α -излучающих радионуклидов. За счёт комбинации методов можно снизить активность α -излучающих нуклидов на один-три порядка до значений 10^3 Бк/дм³, активность ^{137}Cs – на один-два порядка за счёт осаждения на ФЦН. Полученные в результате очистки растворы могут быть кондиционированы в цементную матрицу с захоронением в приповерхностном пункте захоронения радиоактивных отходов как радиоактивные отходы 3 класса.

Наиболее сложной оказалась проблема очистки содовых растворов от короткоживущих продуктов деления, таких как ^{106}Ru . В рамках выполненной работы решить задачу по очистке растворов до уровня НАО не удалось в основном по причине невысокой очистки от рутения. Эксперименты по разрушению комплексных

соединений рутения и стабилизации элемента в четырёхвалентном состоянии не привели к желаемым результатам. Возможным шагом к увеличению очистки содового раствора от ^{106}Ru являются исследования по разрушению азид-ионов как потенциальных комплексонов рутения.

По итогам проведённой работы удалось очистить растворы САО от α -излучающих нуклидов до уровня удельной активности НАО. Очистки растворов от β -излучающих нуклидов до необходимых значений активности достичь не удалось. Показана возможность извлечения долгоживущих α -излучающих нуклидов из растворов САО, направляемых на цементирование, до допустимого уровня удельной активности в цементном компаунде.

ЛИТЕРАТУРА

1. Землянухин В.И., Ильенко Е.И., Кондратьев С.Н. и др. Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС. – М.: Энергоатомиздат, 1983. – 232 с.
2. Слюнчев О.М., Ремизова В.А., Бобров П.А. Результаты цементирования пульпы диоксида

марганца, содержащей альфа-излучающие радионуклиды // Вопросы радиац. безопасности. – 2019. – № 4. – С. 30–38.

3. Михеев С.В. Сорбционные и осадительные процессы извлечения радионуклидов цезия из высокосолевых растворов: автореф-т ... канд. хим. наук. – М., 2010. – 120 с.

4. Милютин В.В., Рябчиков Б.Е., Козлов П.В. Современные методы переработки жидких радиоактивных отходов. – Озерск: ОТИ НИЯУ МИФИ, 2015. – 128 с.

5. Автократова Т.Д. Аналитическая химия рутения. – М.: Изд-во АН СССР, 1962. – 264 с.

6. Звягинцев О.Е., Колбин Н.И., Рябов А.Н. и др. Химия рутения. – М.: Наука, 1965. – 300 с.

7. Ливингстон С. Химия рутения, родия, палладия, осмия, иридия, платины. – М.: Изд-во "Мир", 1978. – 368 с.

8. Патент RU 2230034 C2 C01G 55/00. Способ выделения рутения-106 из рафинатов производства трансплутониевых элементов: Корнилов А.С., Филимонов В.Т.

УДК 546.42:621.039.72

© 2022

РЕЗУЛЬТАТЫ ОПЫТНО-ПРОМЫШЛЕННЫХ ИСПЫТАНИЙ ПО ОКИСЛЕНИЮ ОРГАНИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЙ В РАДИОАКТИВНЫХ СУСПЕНЗИЯХ

П.А. Бобров, О.М. Слюнчев, Н.В. Силич, Н.П. Старовойтов
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"

Проведены опытно-промышленные испытания технологии окисления и последующей сушки суспензии, полученной с установки микрофльтрационной очистки жидких низкоактивных отходов химико-металлургического производства ФГУП "ПО "Маяк". В ходе испытаний было переработано 16,5 м³ радиоактивной суспензии, из которой получено 5,5 м³ пульпы.

Установлен состав газовой фазы при окислении. Проведены сравнительные термогравиметрические исследования неокисленной и окисленной суспензии. Показано, что применение пероксида водорода в сочетании с сульфатом железа не оказывает заметного влияния на взрывопожаробезопасность процесса обращения с отходами. Полученные данные могут использоваться для разработки технологий обращения с радиоактивными суспензиями, содержащими органические вещества.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: ЖИДКИЕ РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ, ОКИСЛЕНИЕ, СУСПЕНЗИЯ, РЕАКТИВ ФЕНТОНА, ВЗРЫВОПОЖАРОБЕЗОПАСНОСТЬ

В результате переработки растворов спецканализации (СК) химико-металлургического производства методом микрофльтрации образуется концентрированная суспензия. Дальнейшее обращение с данным продуктом предполагает многократное концентрирование – упаривание и сушку. Образующийся сухой концентрат направляется на длительное контролируемое хранение.

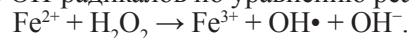
Процесс сушки суспензии является длительным процессом, при этом эффективность сушки составляет всего 20 % от требуемой производительности. Одной из причин невысокой производительности узла сушки является присутствие в суспензии органических веществ, в процессе термической обработки которых выделяются легколетучие низкомолекулярные продукты разложения, способные при определенных условиях к самовоспламенению [1].

Наиболее эффективными методами удаления органических соединений из ЖРО являются деструктивные методы. Деструктивные методы основаны на окислении или разложении органических веществ с образованием газообразных или низкомолекулярных продуктов

реакции. К деструктивным методам относятся: реагентное, гидротермальное, электрохимическое окисление; разрушение под действием излучений высоких энергий (ультрафиолетовое и γ -излучение, ускоренные электроны).

Одним из перспективных способов деструкции органических веществ в водных растворах является окисление с использованием реактива Фентона [2].

В упрощенной схеме по реакции Фентона в кислом растворе разложение H_2O_2 , катализируемое ионами железа (II), приводит к образованию OH -радикалов по уравнению реакции:



Основными преимуществами использования реактива Фентона для окисления органических веществ являются:

- отсутствие высоких давлений и температур;
- значительное сокращение объема отходов (от 2 до 10 раз);
- разложение веществ до углекислого газа, воды и других простейших продуктов [3].

По результатам предварительных лабораторных исследований установлено, что обра-

ботка концентрированной суспензии реактивом Фентона позволяет уменьшить объём исходной суспензии в 3–4 раза.

Целью настоящей работы являлась отработка технологии окислительной обработки суспензии с определением основных показателей процесса, а также исследование данного процесса с точки зрения пожаровзрывобезопасности.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Аппаратурное оформление и порядок проведения испытаний

Опытно-промышленные испытания по окислению органических соединений в радиоактивных суспензиях проводили на участке переработки водно-хвостовых растворов химико-металлургического производства.

Основные технологические операции осуществляли в аппарате-окислителе (полный объём 2,5 м³, рабочий объём 2 м³). Аппарат оборудован сигнализаторами верхнего и нижнего уровня, уровнем декантации, а также датчиком контроля давления. Учитывая определённые ограничения окислительной обработки, а именно увеличение объёма реакционной среды вследствие повышенного пенообразования, было предложено направлять на обработку от 600 до 800 л суспензии.

Принципиальная схема окислительной обработки суспензии представлена на рис. 1.

В ходе испытаний исходная порция суспензии (600–800 л) поступала в реакционный аппарат, где производилось перемешивание с помощью пропеллерной мешалки. С целью создания оптимальной pH среды (менее 3) в реакционный аппарат подавали азотную кислоту в количестве от 90 до 120 л с концентрацией 3 моль/л [4–5].

После корректировки pH реакционной смеси в аппарат, при непрерывном перемешивании, последовательно дозировали раствор сульфата железа (II) ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) в количестве 15 л на каждые 100 л суспензии и пероксид водорода в количестве 80 л (или 160 л в случае повторного окисления) с массовой концентрацией 33 %.

После окончания дозирования перекиси перемешивание прекращали для отстаивания реакционной смеси в течение 10–12 ч. После отстаивания осадка проводили удаление осветлённой части раствора до уровня декантации. Декантат после корректировки pH направляли в голову процесса.

Оставшийся в аппарате осадок нейтрализовывали гидроксидом натрия до значений pH от 8 до 10 и подавали в печи сушки.

Очевидно, что временные интервалы проведения основных технологических операций (время окисления составляло до 12 ч, время отстаивания – от 4 до 6 ч) далеки от оптимальных



Рис. 1. Принципиальная схема окислительной обработки радиоактивной суспензии

значений, предполагающих осуществление всех операций в течение суток. Решение не форсировать производительность процесса было принято для обеспечения стабильности окислительной обработки.

Аналитический и производственный контроль

Производственный контроль осуществляли путём измерения параметров технологического процесса контрольно-измерительными приборами и путём анализа отобранных проб технологических растворов.

Суммарные объёмные активности α - и β -излучающих нуклидов в суспензии определяли радиометрическими методами анализа. Массовые концентрации взвешенных веществ в суспензии определяли гравиметрическим методом анализа. Измерение pH растворов проводили с использованием иономера Экотест-001. Определение состава и объёма газов в динамике при термическом разложении пробы концентрата проводили с использованием термоанализатора STA 449 F3 Jupiter.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Опытно-промышленные испытания по окислительной обработке проводили на реальной радиоактивной суспензии, полученной с установки ультрафильтрации.

Некоторые результаты анализов основных продуктов окислительной обработки приведены в табл. 1.

На основе результатов, представленных в табл. 1, следует отметить перераспределение исходной активности с накоплением её в образующемся осадке. В отдельных пробах декантата были зафиксированы повышенные значения α -излучающих нуклидов, что объяснялось сбоями в дозировании азотной кислоты и неудовлетворительной работой перемешивающего устройства. Результаты анализа сухого остатка осадка свидетельствуют об увеличении содержания доли нерастворённых солей по сравнению с исходной суспензией.

В общей сложности за 23 опытные операции переработано 16,45 м³ радиоактивной суспензии, получено 5,5 м³ пульпы (осадков). Коэффициент уменьшения объёма по сравнению с объёмом исходной суспензии составил 3,0. В сравнении с общим объёмом реакционной смеси (с учётом введения кислоты и пероксида водорода) объём осадка в среднем составил 26 % об., что хорошо согласуется с данными лабораторных исследований, согласно которым объём осадка составлял около 25 % об.

Для оценки влияния окислительной обработки суспензии на производительность узла сушки был организован отдельный сбор и сушка исходной суспензии и осадочной части (пульпы), образовавшейся в результате окислительной обработки. Результаты опытных работ

Таблица 1

Результаты анализа основных продуктов окислительной обработки

Продукт	Показатель, размерность	Значение
Исходная суспензия	Сумма α -излучающих нуклидов, Бк/л	$6,0 \cdot 10^5 - 2,0 \cdot 10^6$
	Сумма β -излучающих нуклидов, Бк/л	$7,0 \cdot 10^4 - 2,0 \cdot 10^5$
	Сухой остаток, г/л	28–51
Декантат	Сумма α -излучающих нуклидов, Бк/л	$5,4 \cdot 10^4 - 4,1 \cdot 10^5$
	Сумма β -излучающих нуклидов, Бк/л	$9,0 \cdot 10^2 - 8,0 \cdot 10^3$
	Сухой остаток, г/л	–
Осадок	Сумма α -излучающих нуклидов, Бк/л	$4,0 \cdot 10^5 - 2,0 \cdot 10^6$
	Сумма β -излучающих нуклидов, Бк/л	$4,5 \cdot 10^4 - 1,0 \cdot 10^5$
	Сухой остаток, г/л	50–93

по сушке пульпы после окислительной обработки суспензии представлены на рис. 2.

Из рис. 2 видно, что скорость сушки окисленной суспензии значительно выше, чем у неокисленной. Так, например, для сушки 1 м³ исходной суспензии потребовалось 45 сут, тогда как для сушки окисленной суспензии – всего 13 сут.

Данный факт однозначно свидетельствует о том, что в результате окислительной обработки нерастворимые в составе исходной суспензии органические соединения становятся водорастворимыми, что приводит к разрушению устойчивой системы (суспензии).

По результатам радиометрического анализа высушенного осадка установлено, что удельная активность α -излучающих нуклидов в высушенной суспензии составила $2,3 \cdot 10^6$ Бк/кг, удельная активность β -излучающих нуклидов в высушенной суспензии – $1,8 \cdot 10^6$ Бк/кг. Согласно [6], по уровням удельной активности α - и β -излучающих нуклидов образующиеся продукты переработки относятся к отходам второго класса.

РЕЗУЛЬТАТЫ ТЕРМОГРАВИМЕТРИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ СУСПЕНЗИИ

Для оценки достаточных мер безопасности была проведена работа по определению состава и температуры газовой фазы образующейся в результате окисления.

Контроль состава и температуры отходящих газов при проведении окислительной обработки суспензии осуществляли выборочно при помощи переносного газоанализатора АВП-02.

На основании предварительных лабораторных экспериментов было установлено, что максимальное газовыделение при окислительной обработке суспензии происходит в течение первого часа с момента введения пероксида водорода. В этой связи измерения температуры и состава отходящих газов проводили в этот период времени.

В табл. 2 приведены результаты контроля состава и температуры отходящих газов после дозирования пероксида водорода.

Как видно по данным табл. 2, в процессе

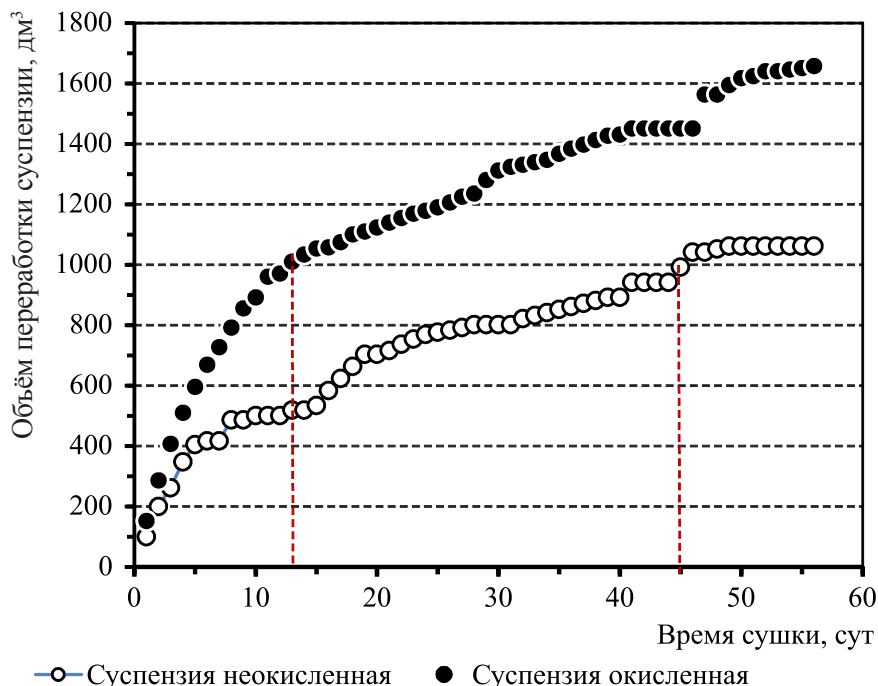


Рис. 2. Зависимость объема переработки суспензии (неокисленной и окисленной) от времени сушки

Таблица 2

Температура и состав отходящих газов

Контролируемый параметр	Операция № 1		Операция № 6		
	0	20 мин	0	20 мин	60 мин
CO, % об.	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
NO ₂ , % об.	1,5	3,0	1,5	3,1	0,5
O ₂ , % об.	20,8	20,8	20,8	20,8	21,0
CH ₄ , % об.	0,05	0,05	0,05	0,05	0,07
H ₂ , % об.	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02	<0,02
Температура, °C	31	35	31	34	37

Таблица 3

Характерные а.е.м. компонентов парогазовой фазы

Состав ПГФ	H ₂ O + ...	CO ₂ + NH(*) + N ₂ O + C ₂ H ₂ F + ...	NO(*) + ...	H ₂ + ...	CO + N ₂ + ...	O ₂ + ...	CH ₄ + ...
Масса, а.е.м.	18	44	30	2	28	32	16

окисления температура отходящих газов повышается с 31 до 37 °C, что свидетельствует о протекании процессов окисления с выделением тепла.

Концентрация метана составила 0,05 % об. При этом концентрация метана находится на безопасном уровне.

Для метана нижний/верхний концентрационный предел распространения пламени в воздухе составляет от 5,28 до 14,1 % об., а нижний/верхний концентрационный предел распространения пламени в кислороде – от 5,1 до 61,0 % об. Концентрация водорода была ниже предела обнаружения данным прибором (< 0,02 % об.), что ниже уровня предела безопасной эксплуатации (2,0 % об.).

По результатам контроля состава отходящих газов в процессе опытных операций можно прийти к заключению, что с точки зрения безопасности данный технологический процесс взрывопожаробезопасен [7].

С целью определения влияния окислительной обработки на последующую сушку проведены сравнительные термогравиметрические исследования исходной суспензии и суспензии после окислительной обработки.

Термический анализ проводили на термоанализаторе STA 449 F3 Jupiter, который

позволяет одновременно регистрировать изменения массы образца (термогравиметрический анализ) и процессы, сопровождающиеся выделением или поглощением тепла (дифференциальная сканирующая калориметрия/дифференциальный термический анализ).

Дополнительно к термоанализатору был подключён масс-спектрометр Aeolus QMS 403 D фирмы NETZCH. Масс-спектрометр позволяет определять газы (в т.ч. взрывопожароопасные), выделяющиеся в ходе термических исследований.

В случае присутствия в образцах легковоспламеняющихся веществ (преимущественно углеводородов) происходит возгорание последних с выделением диоксида углерода и воды. Начало процесса горения определяли по "залповому" выделению диоксида углерода как основного газа, выделяющегося при горении. Выделение паров воды также косвенно указывает на процесс горения углеводородов.

Определение веществ в парогазовой фазе (ПГФ) проводили по характерному для данного вещества отношению заряда к массе – значению атомной единицы массы (а.е.м.). Характерные а.е.м. для различных компонентов ПГФ приведены в табл. 3.

Представленные в табл. 3 результаты пока-

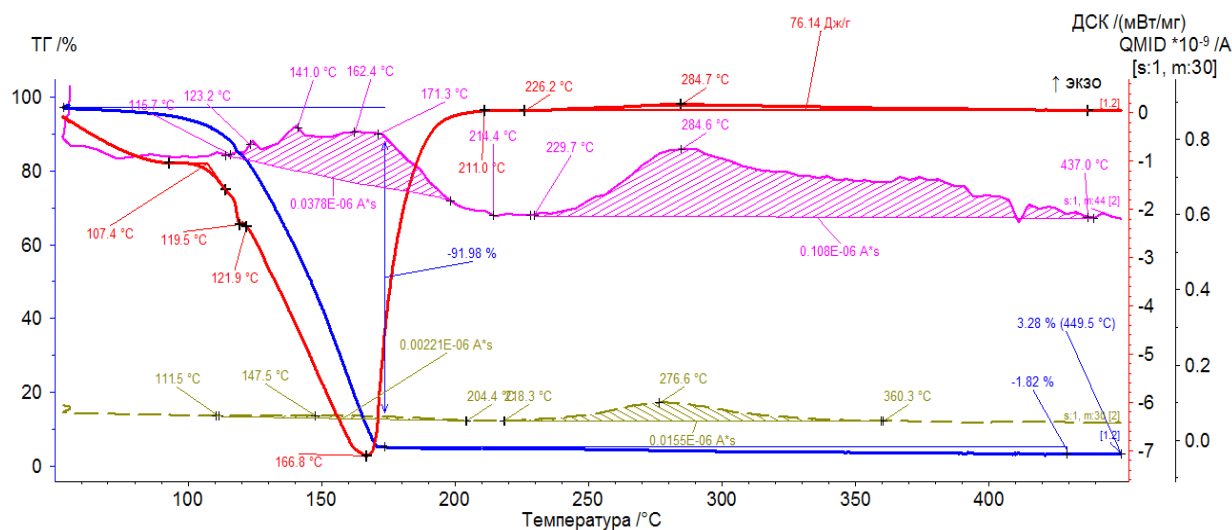


Рис. 3. Термогравиметрическое исследование неокисленной суспензии

зывают, что у метана имеется две характерные линии на спектре – 15 а.е.м. и 16 а.е.м., у оксида углерода а.е.м. совпадает с азотом, а для CO_2 а.е.м. совпадает с рядом газообразных продуктов, таких как аммиак, закись азота и фторированные углеводороды.

На рис. 3 представлены данные по термогравиметрическому исследованию исходной суспензии.

На графике термогравиметрического исследования видно, что области выделения CO_2 имеют две ярко выраженные области, которые позволяют интерпретировать такой характер, как окисление (сгорание) низкотемпературной и высокотемпературной органики. В диапазоне температур от 120 до 180 °C происходит испарение и окисление лёгких углеводородов (многочисленные пики на спектрограмме с массой 44 а.е.м., в основном отвечающей за CO_2). В диапазоне температур от 218 до 360 °C происходит разложение и окисление азотсодержащих веществ. В диапазоне температур от 230 до 437 °C окисляются тяжёлые углеводороды.

На кривой термогравиметрии (ТГ-кривая) видно, что суммарная потеря массы образцом составляет около 93,8 %. Характер кривой изменения массы показывает, что на участке от 80 до 175 °C образец теряет 92 % массы, что связано

с испарением воды и окислением "лёгкой" органики. На участке от 190 до 430 °C потеря массы образцом составляет всего 1,8 %. При температуре 449,5 °C отмечен даже прирост массы (3,3 %), который объясняется, вероятно, окислением минеральных компонентов суспензии.

На рис. 4 представлены данные по термогравиметрическому исследованию окисленной суспензии.

По результатам представленных на рис. 4 данных видно, что в сравнении с исходной суспензией изменилась форма пиков CO_2 , но вид кривой практически не изменился. Так же как на рис. 4, на рис. 3 видны две зоны расположения пиков: низкотемпературная и высокотемпературная.

На кривой термогравиметрии (ТГ-кривая) видно, что суммарная потеря массы образцом составляет около 93 %. Характер кривой изменения массы показывает, что на участке от 80 до 190 °C образец теряет 86,2 % массы, что связано с испарением воды и окислением "лёгкой" органики. На участке от 190 до 750 °C потеря массы образцом составляет всего 3,9 %.

На участке температур от 60 до 98 °C происходит испарение воды и лёгких фракций углеводородов. На участке температур от 98 до 235 °C добавляется процесс окисления лёгких фракций углеводородов, что видно по образова-

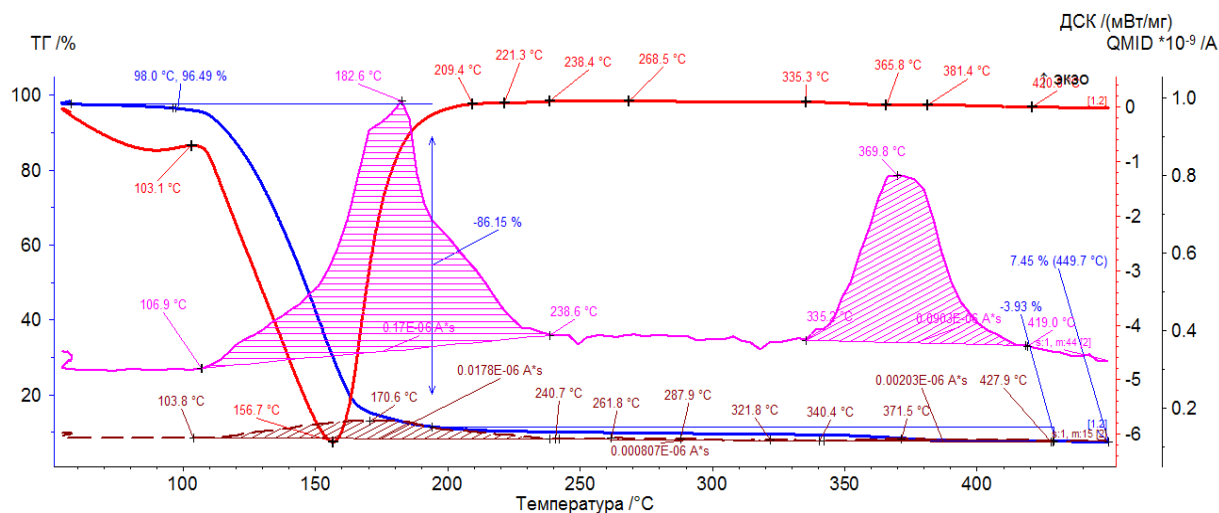


Рис. 4. Термогравиметрическое исследование окисленной суспензии

нию пиков CO и CO_2 и пиков H_2 в очень малых количествах.

После температуры 335°C скорость окисления материала пробы возрастает, выделяются продукты разложения и окисления, что фиксируется по выделению углекислого газа и метана.

Таким образом, термогравиметрические исследования позволили определить температуры полиморфных и фазовых переходов и соответствующие им тепловые эффекты, установить изменение массы образца в процессе испытаний. Анализ результатов показал присутствие в суспензии низкотемпературных и высокотемпературных органических соединений. Отмечено, что за счёт окислительной обработки суспензии полностью удалить высокотемпературные органические вещества из суспензии не удаётся.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены успешные опытно-промышленные испытания по окислению органических соединений в радиоактивных суспензиях с применением реактива Фентона.

В результате окислительной обработки объём осадочной части снижен в 3 раза по сравнению с исходным объёмом суспензии.

Показано, что взрывоопасных газообразных продуктов при проведении окислительной обработки в значимых объёмах не образуется и с точки зрения безопасности процессов данный технологический процесс взрывопожаробезопасен.

Термогравиметрические исследования подтвердили наличие низкотемпературных и высокотемпературных органических веществ в радиоактивной суспензии и показали, что за счёт окислительной обработки суспензии полностью удалить высокотемпературные органические вещества не удаётся.

Предполагается, что внедрение в технологический процесс узла окисления органических веществ приведёт к увеличению производительности узла сушки и исключению условий образования взрывопожароопасных ситуаций.

В настоящее время на ФГУП "ПО "Маяк" продолжают работы по освоению окислительной обработки органических соединений в радиоактивных суспензиях. Вместе с этим запланировано проведение работ по высокотемпературной сушке суспензии для полного удаления органических компонентов из отходов.

Полученные результаты позволяют внести изменения в технологический регламент в части организации процесса окисления радиоактивных суспензий от переработки ЖРО.

ЛИТЕРАТУРА

1. Глухова А.В., Лызлова Е.В, Муртазин К.М. и др. Упаривание и сушка концентрата установки ультрафильтрации химико-металлургического производства ФГУП "ПО "Маяк" // Хим. технология. – 2020. – Т. 21. – № 5. – С. 219–229.
2. Храменков С.В., Хренов К.Е., Шушкевич Е.В. Активированные окислительные процессы в системах подготовки питьевой воды // Вода: химия и экология. – 2012. – № 5. – С. 28–32.
3. Шейнкман Л.Э., Савинова Л.Н., Дергунов Д.В., Тимофеева В.Б. Окислительные процессы очистки промышленных сточных вод // Экология и промышленность России. – 2015. – Т. 19. – № 6. – С. 32–36.
4. Bishop D.F., Stern G., Fleischman M., Marshall L.S. Hydrogen peroxide catalytic oxidation of refractory organics in municipal waste waters // Ind. Eng. Chem. Process. Des. Dev. – 1968. – V. 1. – P. 110–117.
5. Kremer M.L. The Fenton reaction. Dependence of the rate on pH // J. Phys. Chem. – 2003. – V. 107, Iss. 11. – P. 1734–1741.
6. Постановление правительства РФ от 19 октября 2012 г. № 1069 "О критериях отнесения твёрдых, жидких, газообразных отходов к радиоактивным отходам, критериях отнесения радиоактивных отходов к особым радиоактивным отходам и к удаляемым радиоактивным отходам и критериях классификации удаляемых радиоактивных отходов".
7. Положение об оценке пожаровзрывобезопасности технологических процессов радиохимических производств (РБ-060-10): приказ Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору от 14.07.2010 № 606. Москва. – 2010. – 24 с.

УДК 621.039.73

© 2022

ИЗВЛЕЧЕНИЕ ЦЕЗИЯ ИЗ МОДЕЛЬНЫХ РАСТВОРОВ ЩЕЛОЧНЫХ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ НА НЕОРГАНИЧЕСКОМ ФЕРРОЦИАНИДНОМ СОРБЕНТЕ МАРКИ "ФЕРСАЛ"

В.В. Милютин, Н.А. Некрасова

*Россия, г. Москва, Институт физической химии и электрохимии
им. А. Н. Фрумкина РАН*

П.В. Козлов, Д.В. Маркова, К.А. Феоктистов

Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"

Представлены результаты исследования сорбционного выделения цезия из модельного раствора, имитирующего осветлённую фазу ёмкостей-хранилищ щелочных высокоактивных отходов (ВАО) ФГУП "ПО "Маяк", с использованием нового неорганического сорбента российского производства марки "Ферсал" на основе модифицированного ферроцианида никеля в динамических и статических условиях. Показано, что по основным сорбционным показателям: коэффициенту распределения цезия, статической и динамической ёмкости – сорбент "Ферсал" превосходит резорцинформальдегидный катионит марки Axionit RCs и неорганический сорбент зарубежного производства марки "Клевасол". При сорбции цезия в динамических условиях ресурс сорбента "Ферсал" до наступления 1 %-го проскока составляет 88 колоночных объёмов (к.о.) (при этом максимальное значение коэффициента очистки достигает 3400), динамическая ёмкость сорбента по цезию составила 13,6 мг/см³. Десорбция цезия с сорбента "Ферсал" может быть достигнута при использовании раствора 8,0 моль/дм³ HNO₃, при этом степень десорбции цезия составила около 70 %. В процессе десорбции наблюдается частичное разрушение сорбента. Сделан вывод о перспективности сорбента "Ферсал" для очистки от радионуклидов цезия осветлённой фазы ёмкостей-хранилищ ВАО ФГУП "ПО "Маяк".

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: ВЫСОКОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ, ЁМКОСТИ-ХРАНИЛИЩА, СОРБЦИЯ, ДЕСОРБЦИЯ, ЦЕЗИЙ, НЕОРГАНИЧЕСКИЙ СОРБЕНТ, СТАТИКА, ДИНАМИКА

В настоящее время на ФГУП "ПО "Маяк" накоплено значительное количество (более 14,5 тыс. м³) жидких высокоактивных отходов (ВАО), образовавшихся в результате выполнения работ по выделению оружейного плутония. Отходы представляют собой гетерогенные системы, состоящие из осветлённой части и суспензии осадка, в которых жидкая фаза представлена преимущественно гидроксидом, алюминатом, нитритом и нитратом натрия. Активность жидкой фазы на 99 % определяется наличием радионуклида ¹³⁷Cs.

Для переработки данного вида ВАО специалистами ФГУП "ПО "Маяк" и ряда других организаций предлагались различные технологические схемы, предусматривающие раздель-

ную переработку осветлённой фазы и осадков [1]. Важной составляющей предлагаемых схем являлась разработка методов выделения из осветлённой части ёмкостей-хранилищ основного дозообразующего компонента – ¹³⁷Cs. Проведение этой операции позволит резко снизить радиационную нагрузку на персонал на всех дальнейших стадиях переработки, а очищенные растворы перевести в категорию САО и осуществить их иммобилизацию методом цементирования.

Для извлечения цезия из щелочных ВАО наиболее перспективным является сорбционный метод. Для его осуществления предлагалось использовать различные типы сорбентов: синтетические и природные цеолиты, ферроци-

анидный сорбент марки ФС-10, резорцинформальдегидные сорбенты (РФС), неорганический сорбент зарубежного производства марки "Клевасол" (Clevasol). Проведённые испытания показали, что для непосредственного извлечения цезия из сильнощелочных сред могут быть использованы различные РФС [2] и сорбент "Клевасол" [3].

В работе [2] было показано, что РФС марки Axionit RCs-4 производства российской компании ООО "Аксион-РДМ" обладает высокими сорбционными характеристиками по отношению к цезию. Полная динамическая обменная ёмкость сорбента по цезию при сорбции из модельного раствора щелочных ВАО составляет 6–8 мг/см³. Сорбент может быть использован в режиме повторяющихся циклов сорбция-десорбция, десорбцию цезия проводят раствором азотной кислоты с концентрацией 0,5–1,0 моль/дм³. К недостаткам РФС относятся их относительно низкая радиационная и химическая устойчивость.

Испытания сорбента "Клевасол" на реальных ВАО [3] показали, что объёмная активность ¹³⁷Cs в отходах снижается с 10¹⁰ до 10⁵ Бк/дм³, что позволит осуществить цементирование очищенного раствора с получением РАО 3 класса с последующим размещением в приповерхностном пункте захоронения РАО. Эффективный фильтроцикл сорбента "Клевасол" составляет около 90–100 колоночных объёмов (к.о.), коэффициенты очистки в этих условиях достигают значения 10⁵. Сорбент продемонстрировал высокую термическую и радиационную устойчивость. Установлено, что эффективная десорбция цезия с сорбента может быть проведена раствором азотной кислоты с концентрацией 5 моль/дм³, однако сорбционные характеристики сорбента на втором цикле резко снижаются. Кроме того, разработчики сорбента "Клевасол" – компания LEMER PAX Innovative, Франция – не подтверждают возможность промышленного производства данного сорбента, что не позволяет рассматривать его в качестве перспективного для решения задачи переработки ВАО ФГУП "ПО "Маяк".

В настоящее время в ИФХЭ РАН совместно с ООО "Комфинсервис" синтезирован новый неорганический сорбент марки "Ферсал" (на основе модифицированного ферроцианида ни-

келя) селективный к ионам цезия и устойчивый в сильнощелочных средах. Предварительные испытания показали, что сорбент "Ферсал" обладает высокими сорбционно-селективными характеристиками в растворах с концентрацией гидроксида натрия до 100 г/дм³.

Настоящая статья посвящена изучению сорбции цезия из модельных растворов, имитирующих осветлённую фазу ёмкостей-хранилищ ВАО ФГУП "ПО "Маяк", на сорбенте марки "Ферсал" в статических и динамических условиях.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В экспериментах использовали модельный раствор, имитирующий химический состав щелочного декантата накопленных ВАО, состава, г/дм³: Na⁺ – 101; K⁺ – 0,6; Cs⁺ – 0,08; NO₃[–] – 110; NO₂[–] – 35; SO₄^{2–} – 1,5; AlO₂[–] – 13,1; CrO₃^{2–} – 0,9; SiO₃^{2–} – 0,5; OH[–] (свободн.) – 22,0; общее содержание – 336; плотность – 1,190 г/см³. Методика приготовления модельного раствора описана в работе [4].

Катионный состав модельного раствора определяли с помощью метода атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно-связанной плазмой на установке ОЭС-ИСП Avio500.

Перед началом экспериментов в модельный раствор в качестве метки вносили аликвоту щелочного декантата ВАО в соотношении ~ 1 : 1000. Объёмная активность радионуклида ¹³⁷Cs в модельном растворе составила 3,36 · 10⁷ Бк/дм³.

В экспериментах использовали опытный лабораторный образец сорбента "Ферсал", синтезированный в ИФХЭ РАН. Для получения сравнительных характеристик в аналогичных условиях испытывали сорбенты: Axionit RCs (резорцинформальдегидный сорбент производства ЗАО "Аксион-РДМ") и "Клевасол" (неорганический сорбент на основе борсодержащего полимера производства компании LEMER PAX Innovative, Франция). Образец сорбента "Клевасол" предоставлен для испытаний официальным дистрибьютором данного сорбента в России ООО "Комфинсервис".

Перед началом испытаний сорбент Axionit RCs переводили в рабочую натриевую форму путём последовательной обработки в стати-

ческих условиях раствором HNO_3 с концентрацией 1 моль/дм³, водой и раствором NaOH с концентрацией 1,0 моль/дм³. Затем сорбент промывали дистиллированной водой и сушили на воздухе при температуре 60 °С до постоянного веса.

Сорбенты "Клевасол" и "Ферсал" перед началом испытаний рассеивали на сите с получением фракции 0,25–0,50 мм и высушивали на воздухе при температуре 60 °С до постоянного веса. Основные физико-химические характеристики сорбентов приведены в табл. 1.

Исследования сорбции цезия проводили в динамических и статических условиях.

Сорбцию в статических условиях проводили по следующей методике: навеску воздушно-сухого сорбента массой $0,10 \pm 0,01$ г, взвешенную с точностью 0,0001 г, помещали в стеклянную герметично закрывающуюся коническую колбу и приливали 20 см³ модельного раствора. Соотношение массы твёрдой фазы сорбента к объёму модельного раствора (Т : Ж) составляло 1 : 200. Полученную смесь непрерывно перемешивали на перемешивающем устройстве ЛАБ-ПУ-01 в течение 24 ч. После окончания процесса сорбции твёрдую фазу отделяли от раствора путём фильтрования через бумажный фильтр "белая лента" и определяли в фильтрате удельную активность ¹³⁷Cs.

По результатам анализов рассчитывали значения коэффициента распределения (K_d) ¹³⁷Cs, коэффициента очистки (K_{oc}) и статической ёмкости по цезию (CE) по формулам (1)–(3) соответственно:

$$K_d = \frac{A_0 - A_p}{A_p} \cdot \frac{V_p}{m_c}, \quad (1)$$

$$K_{oc} = A_0 / A_p, \quad (2)$$

$$CE = (C_0 - C_p) \cdot V_p / m_c, \quad (3)$$

где A_0, A_p – соответственно удельная активность ¹³⁷Cs в исходном растворе и в фильтрате после сорбции, Бк/дм³;

C_0, C_p – концентрация цезия в исходном растворе и в фильтрате после сорбции соответственно, мг/см³;

V_p – объём жидкой фазы, см³;

m_c – масса сорбента, г.

Для каждого сорбента проводили по три параллельных эксперимента. За результат принимали среднее арифметическое параллельных определений. Относительное расхождение результатов параллельных экспериментов не превышало 15 %.

Эксперименты в динамических условиях проводили на сорбенте "Ферсал" по следующей методике: 2,0 см³ предварительно подготовленного и выдержанного под слоем воды сорбента в виде водной суспензии количественно переносили в пластиковую сорбционную колонку с внутренним диаметром 8,5 мм. При сорбции цезия через сорбент пропускали модельный раствор со скоростью 7,2 см³/ч (3,6 к.о./ч) при помощи перистальтического насоса марки Longerpump BQ-50J (КНР). Фильтраты после колонки собирали по фракциям объёмом около 20 см³ (10 к.о.) и определяли в них удельную активность радионуклида ¹³⁷Cs. По результатам анализа фильтратов строили выходные кривые сорбции в координатах: коэффициент очистки (K_{oc}) и объём пропущенного раствора (V_p), выраженный в колоночных объёмах. Значение K_{oc} вычисляли по формуле (4):

Таблица 1

Физико-химические характеристики сорбентов "Клевасол", "Ферсал" и Axionit RCs

Показатель	Значение показателя для сорбента		
	"Клевасол"	"Ферсал"	Axionit RCs
Внешний вид	Гранулы неправильной формы серого цвета	Гранулы неправильной формы зелёного цвета	Гранулы сферической формы чёрного цвета
Размер гранул, мм	0,25–0,50	0,25–0,50	0,25–0,80
Насыпной вес, г/см ³	0,52	0,53	0,82
Удельный объём набухшего сорбента, см ³ /г	1,92	1,87	3,29

$$K_{oc} = A_0 / A_{\phi}, \quad (4)$$

где A_0, A_{ϕ} – соответственно удельная активность ^{137}Cs в исходном растворе и в фильтрате после сорбции, Бк/дм³.

По результатам анализа фильтратов рассчитывали значения объёмной динамической ёмкости ($D\ddot{E}_v$) сорбента, мг/см³, до достижения определённого проскока по цезию в фильтрат по формуле (5):

$$D\ddot{E}_v = \frac{\sum \frac{C_0 - C_i}{V_i}}{V_c}, \quad (5)$$

где C_0, C_i – концентрация цезия в исходном растворе и в i -ой фракции фильтрата, мг/см³;

V_i – объём i -ой фракции фильтрата, см³;

V_c – объём сорбента в колонке, см³.

Десорбцию цезия с сорбента "Ферсал" проводили путём пропускания раствора 8,0 моль/дм³ HNO_3 со скоростью 7,2 см³/ч (3,6 к.о./ч). Элюаты после колонки собирали по фракциям объёмом около 3,6 см³ (1,8 к.о.) и определяли в них удельную активность радионуклида ^{137}Cs . По результатам анализа элюатов строили выходную кривую десорбции в координатах: концентрация цезия (C), мг/см³, и V , к.о., и рассчитывали степень десорбции (S), % по формуле (6):

$$S = (m_{\text{дес}} / m_c) \cdot 100 \%, \quad (6)$$

где $m_{\text{дес}}$ – количество десорбированного цезия, мг;

m_c – количество сорбированного цезия, мг.

Для использования сорбента "Ферсал" во втором цикле после окончания десорбции его промывали 20 см³ дистиллированной воды и пропускали со скоростью 7,2 см³/ч 20 см³

регенерирующего раствора состава, моль/дм³: NaNO_2 – 0,3; CH_3COOK – 0,6; pH=8,5–9,0. После промывки сорбента 20 см³ дистиллированной воды его использовали для сорбции цезия во втором цикле.

Удельную активность ^{137}Cs в растворах определяли прямым радиометрическим методом по γ -линии 661 кэВ с использованием полупроводникового спектрометра энергий γ -излучения типа СЕГ-01 ППД.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Сорбция цезия в статических условиях

В табл. 2 приведены значения коэффициентов распределения (K_d) ^{137}Cs , коэффициентов очистки (K_{oc}) и статической ёмкости по цезию (CE) для сорбентов "Ферсал", "Клевасол" и Axionit RCs при сорбции из модельного раствора ВАО.

Изученные сорбенты по сорбционным характеристикам в имитационном растворе ВАО располагаются в следующем ряду: "Ферсал" > "Клевасол" >> Axionit RCs. Обращают на себя внимание низкие сорбционные показатели сорбента Axionit RCs, что противоречит результатам, полученным ранее [2, 5]. Вероятнее всего, данные результаты связаны с тем, что испытанный образец сорбента Axionit RCs был изготовлен более 4 лет назад, и за это время произошло его химическое окисление кислородом воздуха.

Таким образом, проведённые испытания в статических условиях показали, что среди испытанных сорбентов наилучшими сорбционно-селективными характеристиками обладает сорбент "Ферсал", который является наиболее перспективным для очистки ВАО ёмкостей-

Таблица 2

Значения коэффициентов распределения (K_d) ^{137}Cs , коэффициентов очистки (K_{oc}) и статической ёмкости по цезию (CE) при сорбции из модельного раствора ВАО на сорбентах "Ферсал", "Клевасол" и Axionit RCs

Сорбент	"Ферсал"	"Клевасол"	Axionit RCs
K_d ^{137}Cs , см ³ /г	5050	171	10
K_{oc}	26	1,85	1,05
CE , мг/г	9,6	4,61	0,48

хранилищ ПО "Маяк". В связи с этим в динамических экспериментах нами был использован только сорбент "Ферсал".

Сорбция цезия в динамических условиях

Сорбция цезия (первый цикл)

На рис. 1 приведена выходная кривая сорбции цезия на сорбенте "Ферсал" при сорбции из модельного раствора ВАО.

Представленные результаты показывают, что на первоначальном участке выходной кривой (60 к.о.) значения $K_{оч}$ составляют около 3400. После этого $K_{оч}$ снижается, и при пропускании ~90 к.о. $K_{оч}=100$, а после 120 к.о. $K_{оч}=10$. 50 %-ный проскок цезия ($K_{оч}=2$) достигается после пропускания около 190 к.о. раствора, при этом ёмкость сорбента по цезию составила 13,6 мг/см³.

Десорбция цезия

Для десорбции поглощённого цезия с сорбента "Ферсал" использовали раствор HNO_3 с

концентрацией 8,0 моль/дм³. Кривая десорбции цезия приведена на рис. 2.

Полученные результаты показывают, что основная часть цезия десорбируется в первых 5 к.о. десорбирующего раствора. Степень десорбции ^{137}Cs с сорбента "Ферсал" составила около 70 %. В процессе десорбции наблюдается разрушение сорбента, которое сопровождается голубым окрашиванием и появлением гелеобразного осадка в первых фракциях элюата. При этом механического разрушения гранул визуально не наблюдается.

Для определения состава продуктов разрушения сорбента фракцию элюата, соответствующую максимальной концентрации цезия, растворили в растворе NaOH с концентрацией 250 г/дм³, а нерастворившийся осадок голубого цвета – в HNO_3 с концентрацией 8 моль/дм³. Химический анализ полученных растворов приведён в табл. 3.

Результаты, представленные в табл. 3, подтверждают предположение о разрушении сорбента в процессе десорбции. В элюатах содержатся компоненты сорбционно-активной составляющей сорбента – ферроцианида никеля (Fe , Ni), и связующего – кремниевой кислоты (Si).

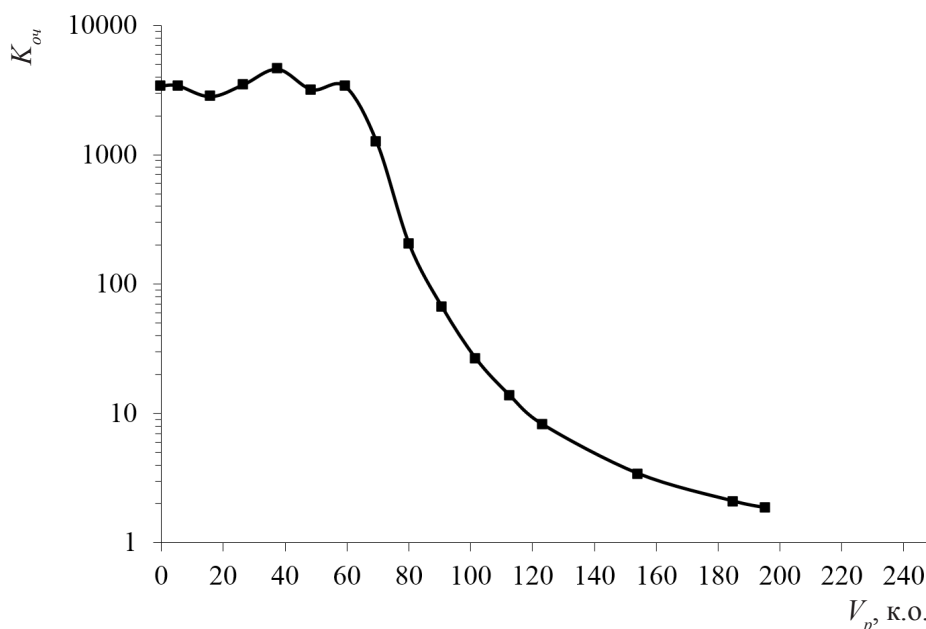


Рис. 1. Выходная кривая сорбции цезия на сорбенте "Ферсал" из модельного раствора ВАО

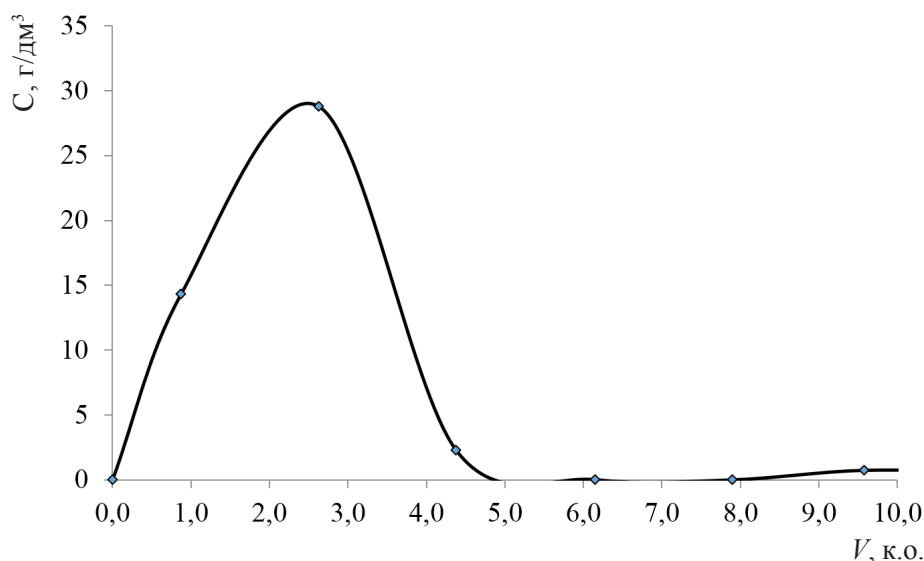

 Рис. 2. Кривая десорбции цезия с сорбента "Ферсал" раствором 8,0 моль/дм³ HNO₃

Таблица 3

 Химический анализ элюата после растворения в растворе NaOH и HNO₃

Состав раствора для растворения осадка	Концентрация элемента в растворе, г/дм ³		
	Fe	Ni	Si
250 г/дм ³ NaOH	2,23	0,065	21,9
8 моль/дм ³ HNO ₃	0,16	1,56	0,42

Сорбция цезия (второй цикл)

В связи с тем, что гранулы сорбента "Ферсал" после проведения десорбции не потеряли своей механической устойчивости, после промывки и регенерации на том же сорбенте был проведён второй цикл сорбции цезия из модельного раствора ВАО в условиях, аналогичных первому циклу. Выходная кривая сорбции цезия на втором цикле приведена на рис. 3. Для наглядности на рисунке приведена кривая сорбции 1-го цикла.

Сорбционные показатели сорбента "Ферсал" в двух последовательных циклах приведены в табл. 4.

Представленные результаты показывают,

что на втором цикле сорбции сорбционные показатели сорбента "Ферсал" (коэффициент очистки и ресурс сорбента) заметно ухудшились, что связано, как было показано выше, с неполной десорбцией цезия и частичным разрушением сорбента.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. В статических условиях изучена сорбция цезия из модельного раствора, имитирующего щелочной декантат накопленных ВАО, на неорганическом сорбенте на основе модифицированного ферроцианида никеля марки "Ферсал", на неорганическом сорбенте на основе борсодержащего полимера марки "Клевасол" производства компании LEMER PAX Innovative, Франция, и на резорцинформальдегидном сорбенте марки Axionit RCs производства компании "Аксион-РДМ", Россия. Показано, что среди испытанных сорбентов наилучшими сорбционно-селективными характеристиками обладает сорбент "Ферсал".

2. Определены основные сорбционные показатели сорбента "Ферсал" при сорбции цезия из модельного раствора ВАО в динамических условиях. Объем пропущенного раствора до наступления 1 %-го проскока ($K_{оч}=100$)

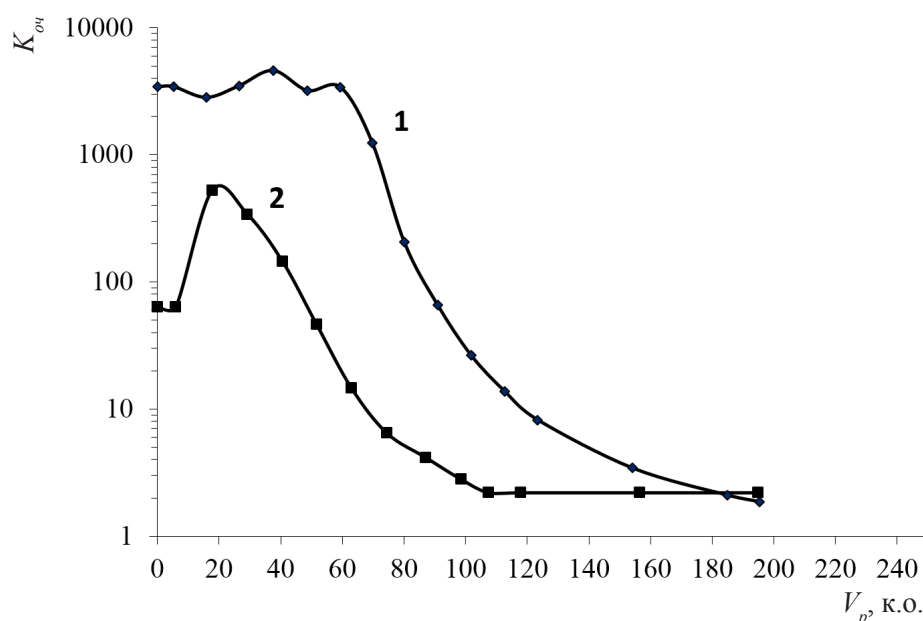


Рис. 3. Выходные кривые сорбции цезия на сорбенте "Ферсал" на первом (кр. 1) и втором (кр. 2) цикле сорбции

Таблица 4

Значения объёмов пропущенного раствора (V_p) до достижения $K_{оч} = 100$; 10 и 2 (V_{100} , V_{10} и V_2 соответственно) и объёмной динамической ёмкости (DE_v) по цезию при достижении $K_{оч} = 2$ на сорбенте "Ферсал" на первом и втором циклах сорбции

Номер цикла	Значение показателя			
	V_{100} , к.о.	V_{10} , к.о.	V_2 , к.о.	DE_v , мг/см ³
1	88	120	189	13,6
2	46	69	110	8,0

составляет 88 к.о., при этом максимальное значение $K_{оч}$ достигает 3400. Динамическая ёмкость сорбента "Ферсал" до достижения 50 %-го проскока по цезию ($K_{оч} = 2$) составляет 13,6 мг/см³.

3. Установлено, что десорбция цезия с сорбента "Ферсал" может быть достигнута при использовании раствора 8,0 моль/дм³ HNO₃, при этом основная часть цезия десорбируется в первых 5 к.о. десорбирующего раствора, степень десорбции цезия составила около 70 %.

В процессе десорбции наблюдается частичное разрушение сорбента.

4. При проведении второго цикла сорбции сорбционные показатели сорбента "Ферсал" резко снижаются, что говорит о целесообразности однократного использования данного сорбента.

5. На основании полученных результатов можно сделать вывод о перспективности сорбента "Ферсал" для очистки от радионуклидов цезия ВАО ёмкостей-хранилищ ФГУП "ПО "Маяк". Для подтверждения этого необходимы дальнейшие исследования по изучению сорбции цезия из реальных ВАО, а также определение химической и радиационно-химической устойчивости сорбента.

Исследования проведены в рамках договора от 04.04.2022 № Н.4д.241.20.22.1057 на выполнение государственного контракта "Разработка и обоснование вариантов переработки высокоактивных отходов сложного химического состава, включая опытно-конструкторские работы и опытно-промышленные испытания оборудования".

ЛИТЕРАТУРА

1. Козлов П.В., Ремизов М.Б., Макаровский Р.А. и др. Основные подходы, опыт и проблемы переработки накопленных в ёмкостях жидких радиоактивных отходов сложного химического состава // Радиоактивные отходы. – 2018. – № 4 (5). – С. 55–66.
2. Козлов П.В., Ремизов М.Б., Логунов М.В. и др. Сорбционное извлечение цезия из модельных щелочных ВАО на резорцинформальдегидных смолах отечественного производства // Вопросы радиац. безопасности. – 2017. – № 1. – С. 34–41.
3. Слюнчев О.М., Истомина Н.М., Старовойтов Н.П. и др. Исследование возможности переработки отходов "ядерного наследия" с использованием сорбента Clevasol // Вопросы радиац. безопасности. – 2020. – № 3. – С. 7–15.
4. Козлов П.В., Казадаев А.А., Макаровский Р.А. и др. Разработка технологии извлечения цезия из осветлённой фазы ёмкостей-хранилищ ВАО ФГУП "ПО "Маяк" на ферроцианидном сорбенте // Радиохимия. – 2016. – Т. 58. – № 3. – С. 255–260.
5. Милютин В.В., Зеленин П.Г., Козлов П.В. и др. Сорбция цезия из щелочных растворов на резорцинформальдегидных сорбентах // Радиохимия. – 2019. – Т. 61. – № 6. – С. 507–511.

УДК 623.454.836 + 539.1.047

© 2022

**ИЗУЧЕНИЕ ПАРАМЕТРОВ ИСТОЧНИКА ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ
В РАЙОНЕ МЕТЛИНСКОГО ПРУДА НА РЕКЕ ТЕЧЕ.
ЧАСТЬ 1. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ И ПРЕДВАРИТЕЛЬНЫЕ
ВАРИАНТНЫЕ РАСЧЁТЫ**

**Ю.Г. Мокров, К.Ю. Мокров
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"
П.А. Кизуб, П.А. Блохин, В.М. Сошников
Россия, г. Москва, ИБРАЭ РАН**

Изучение радиационных рисков для населения, проживавшего в 1949–1956 гг. на р. Тече, имеет фундаментальное значение в области радиационной гигиены, поскольку считается, что жители только этой когорты подвергались пролонгированному облучению с относительно небольшой мощностью дозы. Особое место в этих исследованиях занимает изучение внешней накопленной дозы (НД) облучения жителей с. Метлино, располагавшегося на берегах Метлинского пруда (МП) в 7 км от места сброса жидких радиоактивных отходов в реку. В 2007–2021 гг. выполнен комплекс расчётно-экспериментальных исследований с применением метода термолюминесцентной дозиметрии (ТЛД), направленных на оценку НД в кирпичах сохранившегося на берегу МП здания зернохранилища. Неожиданным результатом этих работ является однотипное возрастание в 2,2 раза современной мощности дозы (МД) и НД (1949–2007 гг.) с увеличением высоты здания. Для объяснения этого эффекта авторам исследований пришлось допустить, что основной источник γ -излучения (ИГИ) в настоящее время и в прошлом находится на глубине 10–30 см от поверхности дамбы на расстоянии не более 20 м от здания. Но такое геометрическое положение ИГИ противоречит результатам измерений распределения НД по глубине кирпичей. Неопределённость существовавших в прошлом (1949–1956 гг.) и существующих в настоящее время пространственных распределений ИГИ в районе МП не позволяет получить достоверные оценки НД для населения.

Режим эксплуатации МП предполагал периодический сброс воды для приведения в действие водяной мельницы, что сопровождалось частичным оголением донных отложений и возрастанием МД на берегах. Приведены результаты вариантных расчётов методом Монте-Карло пространственного распределения МД для различных положений точечного ИГИ на оголённой донной поверхности и береговой полосе МП с учётом барьерной геометрии. Определены возможные геометрические положения ИГИ, которые позволяют объяснить все известные экспериментальные распределения современных МД (переносной дозиметр) и НД (метод ТЛД) у здания зернохранилища в с. Метлино. Полученные результаты позволяют более корректно оценить НД для жителей с. Метлино.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: КОГОРТА НАСЕЛЕНИЯ РЕКИ ТЕЧИ, МЕТЛИНСКИЙ ПРУД, РЕТРОСПЕКТИВНАЯ ДОЗИМЕТРИЯ ВНЕШНИХ ДОЗ, МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО, РАСЧЁТ РАСПРОСТРАНЕНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ, ДОННЫЕ ОТЛОЖЕНИЯ

В 1949–1956 годы, в период выполнения Государственной оборонной программы ПО "Маяк" производило регламентные и аварийные сбросы жидких радиоактивных отходов (ЖРО) в р. Течу. В результате произошло

радиоактивное загрязнение речной системы, а жители прибрежных населённых пунктов подверглись радиационному воздействию [1–2]. Специалисты Уральского научно-практического центра радиационной медицины

(УНПЦ РМ, г. Челябинск) в течение многих лет проводят разноплановые дозиметрические и эпидемиологические исследования, направленные на выявление отдалённых последствий облучения населения и оценку радиационных рисков [3]. Все полученные результаты по оценке доз облучения населения р. Течи накапливаются в компьютерной дозиметрической системе р. Течи (TRDS), которая непрерывно пополняется и корректируется.

До настоящего времени все рекомендации МКРЗ по оценке радиационных рисков основывались на результатах обследования населения, пережившего атомную бомбардировку в Японии, т.е. на основе изучения показателей здоровья лиц, подвергшихся острому радиационному воздействию с высокой мощностью дозы. Проводимые в УНПЦ РМ исследования когорты населения р. Течи имеют важнейшее фундаментальное значение и направлены на оценку радиационных рисков при облучении с относительно небольшой мощностью дозы в течение достаточно длительного периода времени. Результаты этих исследований могут служить основой для уточнения значений коэффициентов радиационных рисков. Оценка внешних доз для жителей с. Метлино спустя 70 лет после загрязнения представляет чрезвычайно сложную задачу, но имеет особую важность, поскольку это село было ближайшим к месту сбросов ЖРО [1–5]. Существующие оценки внешних доз для жителей с. Метлино характеризуются высокой неопределённостью, а имеющиеся результаты ретроспективной дозиметрии (ТЛД, ЭПР и др.) противоречивы и не находят достоверного объяснения.

Цель работы состоит в реконструкции параметров источников γ -излучения в районе с. Метлино, существовавших в прошлом (1951 г.) и существующих в настоящее время (2007–2012 гг.).

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Анализ результатов ретроспективной дозиметрии

С целью подтверждения достоверности результатов TRDS при определении доз внешнего облучения жителей с. Метлино междуна-

родной группой исследователей в 2007–2021 гг. выполнен комплекс уникальных расчётно-экспериментальных исследований, направленных на оценку накопленной поглощённой дозы в кирпичах сохранившегося здания зернохранилища бывшего с. Метлино с использованием метода термолюминесцентной дозиметрии (ТЛД) [4–5]. Пробы кирпичей отбирались в 2007 г. из северо-западной стены зернохранилища, обращённой к МП (рис. 1). Было взято несколько образцов кирпичей на различной высоте их расположения и на различной глубине в кирпиче.

Отобранные пробы кирпичей использовались в качестве ТЛ-дозиметров для экспериментального определения общей поглощённой дозы, накопленной в кирпичах за период существования здания (D_t). Эта доза обусловлена космическим излучением (D_{cos}), излучением естественных радионуклидов ($^{235,238}\text{U}$, ^{232}Th , ^{40}K и др.), присутствующих в материале кирпича и объектах окружающей

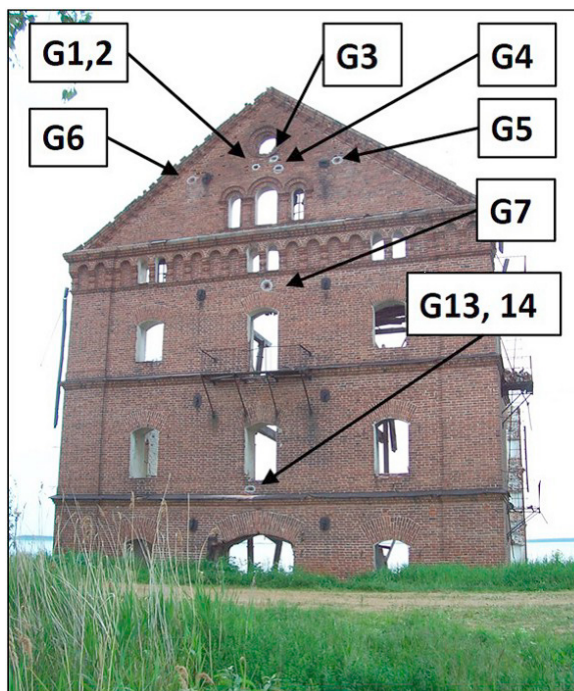


Рис. 1. Места отбора проб кирпичей с северо-западной стены зернохранилища [4]

среды (D_E), а также техногенными радионуклидами, присутствовавшими в атмосферных выбросах и сбросах ЖРО в МП в 1949–2007 гг. (D_X). Методические аспекты проведения экспериментальных исследований приведены в работах [4, 6].

Посредством отбора и анализа хорошо экранированных кирпичей (отобранных из глубинных частей здания зернохранилища) определена фоновая доза, и проведено датирование возраста зернохранилища. Оценка МД γ -излучения в местах расположения образцов и перед зернохранилищем произведена посредством ТЛ-дозиметров и переносного радиометра. Техногенные дозы в кирпичах (D_{XS}) определялись путём вычитания из общей накопленной дозы (D_L) дозы, обусловленной радионуклидами космогенного (D_{Cos}) и естественного происхождения (D_E), а именно ($D_{XS} = D_L - D_{Cos} - D_E$), и варьируются от 0,8 до 1,7 Гр, причём было выявлено увеличение дозы в зависимости от высоты расположения образца (табл. 1).

На втором этапе исследований авторами [4, 5] была предпринята попытка разделить общую накопленную техногенную дозу (D_{XS}) на дозу, которая была накоплена кирпичом в период проживания жителей в с. Метлино до их переселения в 1956 г. ($D_{X,1949-1956}$), и на дозу, которая была получена кирпичом в период после переселения жителей в 1956 г. и до отбора пробы кирпичей в 2007 г. ($D_{X,1957-2007}$):

$$D_{XS} = D_{X,1949-1956} + D_{X,1957-2007}$$

Разделение проведено на основе моделирования переноса γ -излучения методом Монте-Карло (код MCNP) для разработанной компьютерной модели местности в районе плотины МП и с использованием современных (2012 г.) результатов измерений МД и результатов определения радиоактивного загрязнения местности на дамбе МП перед стеной зернохранилища. Одним из наиболее неожиданных результатов, полученных авторами работы [4], является возрастание МД и накопленной дозы (НД) с высотой от поверхности земли. Детальный анализ всех полученных результатов приведён в работе [5], где авторы делают следующие выводы и дают такие объяснения экспериментальным данным:

1. Современное распределение МД γ -излучения по высоте (2012 г.) очень схоже с распределением НД (1949–2007 гг.), полученным при проведении измерений в кирпиче. На данном этапе невозможно определить: является ли эта схожесть случайной или это признак того, что текущие геометрические параметры источника репрезентативны для временного периода накопления техногенной дозы в кирпиче.

2. Дозы в кирпиче были измерены с достаточной точностью, но высокая неопределённость реконструкции доз, накопленных после 1956 г., препятствует получению достоверных доз в кирпиче, накопленных за 1949–1956 гг.

3. Основная поглощённая доза была

Таблица 1

Результаты измерений поглощённой дозы в кирпичах из северо-западной стены зернохранилища с. Метлино (1949–2007 гг.) [5]

Образец	Высота, ⁽¹⁾ м	Доза, мГр	Мощность дозы, ⁽²⁾ мГр /год	Эффективное время облучения, лет ⁽³⁾
G1/2	16 (13,05)	1731	10,38	167,5
G4		1739		
G5		1697		
G6		1749		
G7	11,5 (8,90)	1408	8,65	162,8
G13	5,0 (2,15)	779	4,53	172,0
G14		815		

Примечание: ⁽¹⁾ в скобках указана высота от гребня дамбы; ⁽²⁾ определена с использованием переносных и ТЛ-дозиметров в 2012 г.; ⁽³⁾ определена как частное от деления поглощённой дозы на МД.

получена в период после 1956 г. То есть $D_{X,1949-1956} \ll D_{X,1957-2007}$ (или $D_{X,1949-1956} \approx 0$).

4. Распределение НД по высоте стены зернохранилища и по глубине кирпича представляет независимую ценную информацию об энергии источника и его конфигурации.

5. Современное распределение МД и кермы по высоте стены обусловлено в основном радиоактивным загрязнением (^{137}Cs) территории гребня дамбы шириной не более 20 м, непосредственно прилегающей к стене зернохранилища. Причём основная часть активности расположена в глубине дамбы, а верхний слой почвы высотой 10–20 см практически не имеет радиоактивного загрязнения. Такое пространственное распределение активности источника позволяет объяснить возрастание кермы (МД) с высотой от поверхности дамбы. Действительно, для γ -квантов, которые вылетают из заглублённого источника в направлении нижней или верхней части стены, длина пути, пролегающего в материале дамбы (в защитном экране), может значительно отличаться. Поэтому плотность потока прямого (не рассеянного в материале дамбы) γ -излучения и МД у верхней части стены может быть значительно больше, чем у нижней части стены. Вместе с тем это означает, что в верхней части стены формируется относительно более жёсткий спектр γ -квантов (близкий к энергии первичного излучения источника), а в нижней части стены наблюдается более мягкий спектр γ -квантов (с меньшей средней энергией).

6. Результаты измерений [4] показывают, что относительное распределение НД по глубине кирпичей для всех трёх положений по высоте в пределах экспериментальной погрешности практически одинаково. Это означает, что средние энергии γ -спектров в любой точке по высоте стены практически одинаковы и существенно меньше первичной энергии источника.

7. Отмечено удовлетворительное совпадение между значениями измеренного и смоделированного градиента распределений для нижней части стены (образец G14), тогда как градиент расчётных распределений НД по глубине для образцов кирпичей, расположенных в верхней части, был существенно меньше, чем измеренный [5]. Это означает, что реальная средняя энергия γ -спектра в верхних точках по

высоте стены была существенно меньше, чем расчётная. Такие расчётные результаты для геометрии глубинного распределения источника γ -квантов обусловлены более высоким вкладом рассеянных фотонов радионуклидов, находящихся в почве дамбы. Рассеянные γ -кванты обладают более низкой энергией, чем нерассеянное излучение, и, следовательно, более значительным ослаблением по глубине кирпича.

Таким образом, для того, чтобы объяснить увеличение МД и НД (керма) по высоте стены зернохранилища, авторам [5] пришлось допустить, что основной источник облучения в настоящее время (и в прошлом) находится на глубине 20–30 см от поверхности дамбы, на расстоянии не более 20 м от стены. Но такое геометрическое положение источника противоречит результатам измерений распределения НД по глубине кирпичей в верхней части стены. Остается признать, что пространственное распределение основного источника γ -излучения, МД и НД на территории у Метлинского пруда до сих пор неизвестны в полном объёме, что не позволяет достоверно использовать имеющиеся экспериментальные данные по ТЛД измерениям для оценки НД у жителей с. Метлино.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Характеристика верховья р. Течи

Через р. Течу и далее в р. Исеть осуществляется русловой сток воды из Каслинско-Иртышской системы озёр. До середины 1950-х годов началом р. Течи являлся исток из оз. Иртыш с транзитом воды через оз. Кызыл-Таш. Сток воды из оз. Иртыш зарегулирован плотиной П-1, а сток воды из оз. Кызыл-Таш (водоём В-2) – плотиной П-2 [1].

ЖРО поступали в р. Течу по трубопроводу в точке, расположенной на 300 м ниже створа плотины П-2. Для разбавления ЖРО через плотину П-2 сбрасывалась условно чистая вода из оз. Кызыл-Таш. После смешения сбросные воды самотёком поступали сначала в Кокшаровский пруд (водоём В-3), который был построен в августе 1951 года, затем – в Метлинский пруд (водоём В-4), и только потом – в открытую гидрографическую систему

р. Течи. За время прохождения сбросных вод через проточные водоёмы В-3 и В-4 (несколько суток) значительная часть радионуклидов сорбировалась на донных отложениях и взвешях, которые осаждались на берегах и дне водоёмов. В августе-октябре 1951 г. мощность экспозиционной дозы на берегах МП достигала 5 мР/с (~180 мЗв/ч) [1–3].

Состояние Метлинского пруда и его плотины

Регулярные измерения уровня воды в Метлинском пруду (МП) были организованы начиная с 1954 г., а до этого определялись только эпизодически. Уровень воды в МП на 29 августа 1949 г. составлял 219,6 м, а в нижнем бьефе плотины МП – 215,1 м, то есть подпор воды на плотине достигал ~4,5 м [7].

Вода из МП периодически сбрасывалась и расходовалась на приведение в действие жерновов водяной мельницы и динамо-машины мало-мощной сельской электростанции. Известно [7], что сбросы проводились в вечернее время для освещения села, когда жители находились дома. Понижение уровня воды в МП приводило к существенному увеличению МД в результате снижения толщины защитного водного экрана. Восстановление уровня воды в МП происходило ночью и утром. В 1950-х годах все измерения МД на берегах МП проводились в дневное время, когда уровни воды были близки к нормальным, а значения МД были минимальны.

С целью улучшения радиационной обстановки в районе МП, в октябре 1951 г. была осуществлена "промывка" водоёмов В-3 и В-4. Период "промывки" водоёмов продолжался с 13 по 22 октября 1951 г. (10 сут) [1–2]. С 13 по 17 октября 1951 г. из водоёмов В-3 и В-4 была сброшена вся вода, а затем, с 17 по 22 октября, при открытых затворах плотин П-3 и П-4 был осуществлён попуск воды из водоёма В-2 с расходом около 30 м³/с. Таким образом, в период с 13 по 17 октября 1951 г. площадь оголённых донных отложений (ДО) водоёма В-4 непрерывно возрастала, приближаясь к площади акватории, а с 17 по 22 октября при попуске воды с расходом 30 м³/с, площадь оголённых ДО уменьшилась до ~50 % от площади акватории (~0,5 км²) [2]. В период промывки в

прибрежных районах с. Метлино должны были наблюдаться аномально высокие значения МД внешнего γ -излучения, которые определялись геометрией и поверхностной активностью оголённых участков дна МП. К сожалению, измерений МД в этот период времени не проводилось.

Загрязнение донных отложений Метлинского пруда

Для оценки радиационной обстановки на берегах пруда и в селе необходимо определить поверхностную удельную активность (УА) ДО. В 1951 г. пробы ДО [1–2] отбирались 17 октября непосредственно со дна водоёма (при спущенной воде), путём послойного отбора проб из трёх шурфов. Среднее значение УА ДО на юго-востоке (в районе плотины П-4) по состоянию на октябрь 1951 г. примем равным 4 мКи/кг [8], значение поверхностной плотности ДО для слоя высотой 2,5 см – 25 кг/м² [2], а долю γ -излучающих нуклидов в суммарной активности ДО – 0,5 [2]. Тогда значение поверхностной плотности оголённых ДО для γ -излучающих РН в 1951 г. будет $\sigma_{1951} \approx 2$ ГБк/м².

Используемые методы расчёта переноса γ -излучения

Оценка дозовых характеристик полей γ -излучений выполнялась с помощью аттестованного под такие задачи кода TDMCC (Time Dependent Monte-Carlo Code) [9–11]. Данный код разрабатывается в РФЯЦ-ВНИИЭФ и предназначен для моделирования процессов переноса нейтронов и γ -квантов в трёхмерных системах. Для этого в TDMCC реализовано численное решение линейных неоднородных уравнений переноса нейтронов и фотонов аналоговыми и неаналоговыми методами Монте-Карло. Расчёты возможно выполнять без упрощений относительно геометрии с использованием точных моделей взаимодействия нейтронов и фотонов с веществом. При анализе результатов используется свёртка плотности потока с функцией поглощённой дозы и кермы в воздухе [12]. В табл. 2 приведены данные о составе и плотности материалов, используемых при моделировании.

Таблица 2

Элементный состав и плотность материалов, применяемых при моделировании в весовых долях

Элемент	Весовая доля			
	Воздух	Вода	Почва	Кирпич
Водород (H)	0,001	0,111	0,0021	
Углерод (C)	<0,001		0,016	
Азот (N)	0,751			
Кислород (O)	0,236	0,889	0,577	0,475
Натрий (Na)				0,005
Магний (Mg)				0,017
Алюминий (Al)			0,050	0,085
Кремний (Si)			0,271	0,296
Сера (S)				0,002
Аргон (Ar)	0,013			
Калий (K)			0,013	0,026
Кальций (Ca)				0,040
Титан (Ti)				0,006
Железо (Fe)			0,011	0,048
Плотность, г/см ³	0,0010	1,0	1,6	1,8

РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО

Расчёт переноса γ -квантов в атмосфере с учётом процесса многократного рассеивания, для сложной геометрии среды и неравномерного распределения мощности источника по его поверхности (объёму) представляет сложную задачу, требующую значительных компьютерных ресурсов и времени, и поэтому такие расчёты целесообразно проводить в несколько этапов. На первом этапе, для выявления основных особенностей и закономерностей переноса γ -квантов в атмосфере на большое расстояние (более 100 м), была выполнена серия вариантных расчётов для простейшей геометрии, когда точечный источник (ТИ) расположен на ровной (без барьеров) поверхности раздела двух бесконечных сред "атмосфера-почва" ("атмосфера-вода"). Конечные результаты расчётов представлены в виде свёртки по энергии для кермы в воздухе (K). На этом этапе изучалось влияние исходной энергии γ -квантов (E), свойств ат-

мосферы (влажность, давление), материала "подложки" (почва/вода) на конечный результат в зависимости от расстояния от источника по горизонтали (R) и высоты от границы раздела сред по вертикали (H) как функции $K(R, H, E)$.

При необходимости на следующем этапе строится аналитическая пространственная модель поля γ -излучения от ТИ (в виде кермы в воздухе) как функции от R и H . На последующем этапе, используя свойства аддитивности, задаётся конкретная геометрия источника излучения, и проводится численное интегрирование [8]. Такие вариантные расчёты позволяют быстро оценить и понять значимость неопределённости пространственного распределения мощности источника по его поверхности (объёму). На заключительном этапе, с учётом результатов всех выявленных на предварительных этапах исследований закономерностей, проводятся окончательные расчёты для модельной геометрии, которая наиболее адекватно учитывает реальную геометрию изучаемого объекта.

РЕЗУЛЬТАТЫ ВАРИАНТНЫХ РАСЧЁТОВ (БЕЗ БАРЬЕРОВ)

На рис. 2 приведены результаты расчётов вертикального распределения кермы в воздухе (K) в зависимости от высоты (H) для различных расстояний ($R=10, 100, 200, 400$ м) от ТИ γ -излучения с энергией $E=0,66$ МэВ (как для ^{137}Cs), расположенного на поверхности полубесконечного слоя воды. Анализ приведённых на рис. 2 данных показывает, что для каждого радиуса R максимальное значение кермы в вертикальном распределении наблюдается не у поверхности воды ($H=0,5$ м), а на некоторой высоте H_{\max} , значение которой возрастает с увеличением расстояния R от ТИ (табл. 3). При этом наблюдается увеличение отношения $\delta = K(H=H_{\max}) / K(H=0,5 \text{ м})$. Такой характер пространственного распределения поля γ -излучения хорошо известен, и этот эффект получил название "sky shine". Данные табл. 3 показывают, что для плоской (безбарьерной) геометрии возрастание кермы с высотой за счёт эффекта "sky shine" (δ) не превышает 20–30 % и наблюдается на высоте $H_{\max} > 20$ м. Таким образом, увеличение НД (керма) с высотой по стене

Таблица 3

Характеристика эффекта "sky shine"

Параметр	Расстояние от ТИ по горизонтали R , м				
	10	50	100	200	400
Значение H_{\max} , м	1,5	9,5	18,5	48,5	62,5
$\delta = K(H=H_{\max}) / K(H=0,5 \text{ м})$	1,04	1,11	1,16	1,23	1,35

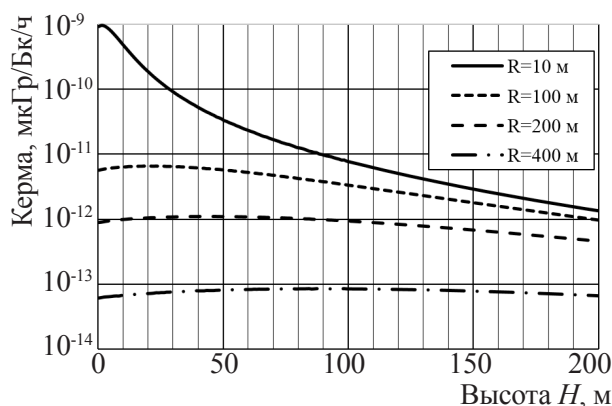


Рис. 2. Распределение кермы в воздухе в зависимости от высоты H над поверхностью полубесконечного слоя воды, для различных расстояний (радиус $R=10, 100, 200$ и 400 м) от точечного источника γ -квантов с активностью 1 Бк и энергией 0,66 МэВ, расположенного на поверхности воды

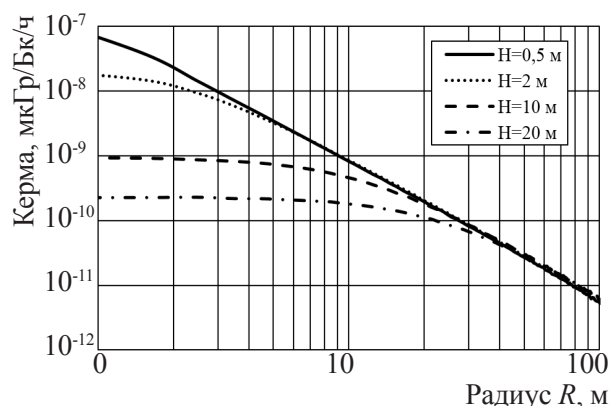


Рис. 3. Распределение кермы в воздухе в зависимости от расстояния R от точечного источника γ -квантов с активностью 1 Бк и энергией 0,66 МэВ, расположенного на поверхности полубесконечного слоя воды, на различных высотах $H=0,5; 2; 10$ и 20 м от поверхности воды

зернохранилища (табл. 1) не связано напрямую с эффектом "sky shine".

На рис. 3 приведены результаты расчётов горизонтального распределения кермы в воздухе (K) в зависимости от радиуса (R), для различных высот ($H=0,5, 2, 10, 20$ м) от ТИ γ -излучения с энергией $E=0,66$ МэВ, расположенного на поверхности полубесконечного слоя воды. Следует отметить, что при удалении от ТИ на расстояние R более ~ 30 м распределение кермы по высоте H в диапазоне от 0,5 м до 20 м остаётся практически постоянным.

На рис. 4 приведены некоторые результаты вариантных расчётов, которые демонстрируют изменение функций $K(H, R=10 \text{ м})$ и $K(H, R=200 \text{ м})$ для случаев, когда ТИ расположен на полубесконечном слое воды или почвы. Эти расчётные результаты показывают, что при за-

мене "подложки" из воды на почву значения кермы отличаются только на значительных расстояниях от ТИ (при $R>100$ м), и даже при $R=200$ м эти отличия не превышают 3–4 %.

Результаты третьей группы вариантных расчётов показали, что если энергию γ -квантов источника увеличить в 2,4 раза и принять равной 1,6 МэВ (как для ^{140}La), то отношение $K(H=10 \text{ м}, R, E=1,6 \text{ МэВ}) / K(H=10 \text{ м}, R, E=0,66 \text{ МэВ})$ будет изменяться:

- от 2,0 до 2,4 при $R=(1-150) \text{ м}$;
- от 2,4 до 2,8 при $R=(150-250) \text{ м}$;
- от 2,8 до 5,0 при $R=(250-500) \text{ м}$.

Представляет интерес изучение изменения результатов расчётов при изменении абсолютной влажности атмосферного воздуха в районе пруда от $V=50 \text{ г/м}^3$ в летний период до $V=2 \text{ г/м}^3$ в зимний период. Выполненные вариант-

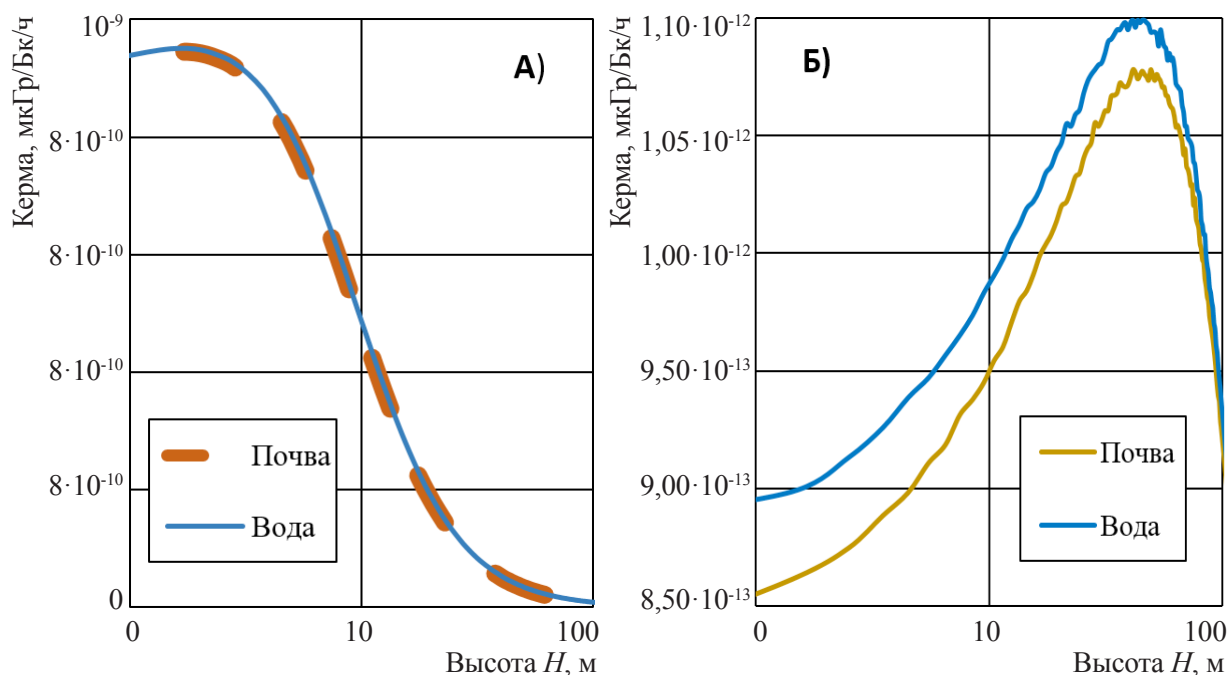


Рис. 4. Распределение кермы в воздухе в зависимости от высоты H над поверхностью полубесконечного слоя воды или почвы по вертикальной оси, удалённой на расстоянии $R=10$ м (А) и $R=200$ м (Б) от точечного источника, расположенного на границе раздела сред, с активностью 1 Бк и энергией 0,66 МэВ

ные расчёты показали, что отношение $K(H=10 \text{ м}, R, E=0,66 \text{ МэВ}, V=2 \text{ г/м}^3) / K(H=10 \text{ м}, R, E=0,66 \text{ МэВ}, V=50 \text{ г/м}^3)$ будет изменяться:

- от 0,98 до 1,03 при $R=(1-180)$ м;
- от 1,03 до 1,30 при $R=(180-500)$ м.

Таким образом, изменение абсолютной влажности воздуха в диапазоне $V=2-50 \text{ г/м}^3$ не сказывается существенным образом на результатах расчётов. При этом относительные распределения эффекта "sky shine" для всех типов вариантных расчётов практически не изменяются.

РЕЗУЛЬТАТЫ ВАРИАНТНЫХ РАСЧЁТОВ (С УЧЁТОМ БАРЬЕРОВ)

Для поверхностных источников γ -излучения в качестве барьеров, существенно искажающих пространственное распределение поля излучения, могут выступать даже незначительные (высотой до 1–2 м) неоднородности рельефа местности. На космическом фотосним-

ке 2012 г. территории в районе зернохранилища (рис. 5) видны: основная дамба плотины МП, вспомогательная кольцевая дамба перед железобетонным водосбросом, остатки стен мельницы и зернохранилища, обширные заболоченные участки. Основным барьером следует считать саму дамбу плотины П-4, высота которой над уровнем воды может достигать 5 м. На рис. 6 приведена фотография дамбы плотины, сделанная в 2009 г. со стороны кольцевой дамбы (точка "В" на рис. 5), где на заднем плане можно видеть фрагмент стены водяной мельницы. В качестве дополнительных барьеров могут служить сооружения вспомогательной кольцевой дамбы, которые выступают над уровнем воды на 1,5–2 м. Источником γ -излучения (ИГИ) следует считать донные отложения (ДО) в случае их частичного оголения на урезе береговой полосы при понижении уровня воды в МП (например, при ежедневном сбросе воды в вечернее время для запуска электрогенератора) или в период промывки МП (октябрь 1951 г.).



Рис. 5. Космический фотоснимок территории в районе плотины МП (2012 г.)

Если точечный ИГИ расположен на значительном расстоянии от барьера (более 2–3 высот дамбы), то форма барьера практически не оказывает никакого влияния на результаты расчёта поля излучения. В противном случае, когда ИГИ расположен вблизи или даже на поверхности барьера, конструкция дамбы может существенным образом определять пространственное распределение поля γ -излучения за барьером. Рельеф местности и реальная конструкция основной и кольцевой дамб могут существенно отличаться на различных участках перед зданием зернохранилища. Поэтому ниже приведены только идеализированные расчётные схемы некоторых барьерных геометрических моделей, где в качестве защитных барьеров выступает дамба плотины МП и кольцевая дамба промежуточного пруда. Все расчёты проведены для энергии γ -квантов 0,66 МэВ.

ВАРИАНТНЫЕ РАСЧЁТЫ С ОДНИМ БАРЬЕРОМ

В первой серии вариантных расчётов точечный ИГИ располагался на дне МП в период его промывки (без экранирующего слоя воды) на различных расстояниях X от стены зернохранилища по оси АБ (рис. 5), а экранирующим барьером являлась дамба плотины прямоуголь-



Рис. 6. Фотография дамбы плотины МП в районе водосброса (2009 г.)

ной формы (рис. 7А). Результаты этих расчётов показали (рис. 8), что при $X=30$ м экранирующее воздействие дамбы распространяется на всю высоту стены, а её облучение происходит только за счёт рассеянного излучения в воздухе над дамбой. При этом наблюдается возрастание значения кермы по всей высоте стены, которое хорошо совпадает с распределением МД и НД в кирпичах стены (табл. 1). При $X=50$ м экранирующее воздействие дамбы распространяется только на нижние 5 м по высоте стены, а при $H=5$ м наблюдается ступенчатое возрастание значения кермы (до 5 раз). Соответственно, при $X=100$ м, керма возрастает в 3,5 раза на высоте $H=2$ м. Это означает, что для этих вариантов верхняя часть стены дополнительно облучается прямым (нерассеянным) γ -излучением, которое характеризуется значительно более жёстким γ -излучением.

Таким образом, анализ рис. 7А и 8 позволяет сделать важный вывод о том, что поверхностный источник γ -квантов, размещённый на дне МП вблизи дамбы, мог создать относительное распределение кермы по стене зернохранилища, соответствующее экспериментальным данным, когда значение НД возрастает в ~ 2 раза при увеличении H от 2,15 м до 13,05 м (табл. 1).

На следующем этапе расчётов геометрия

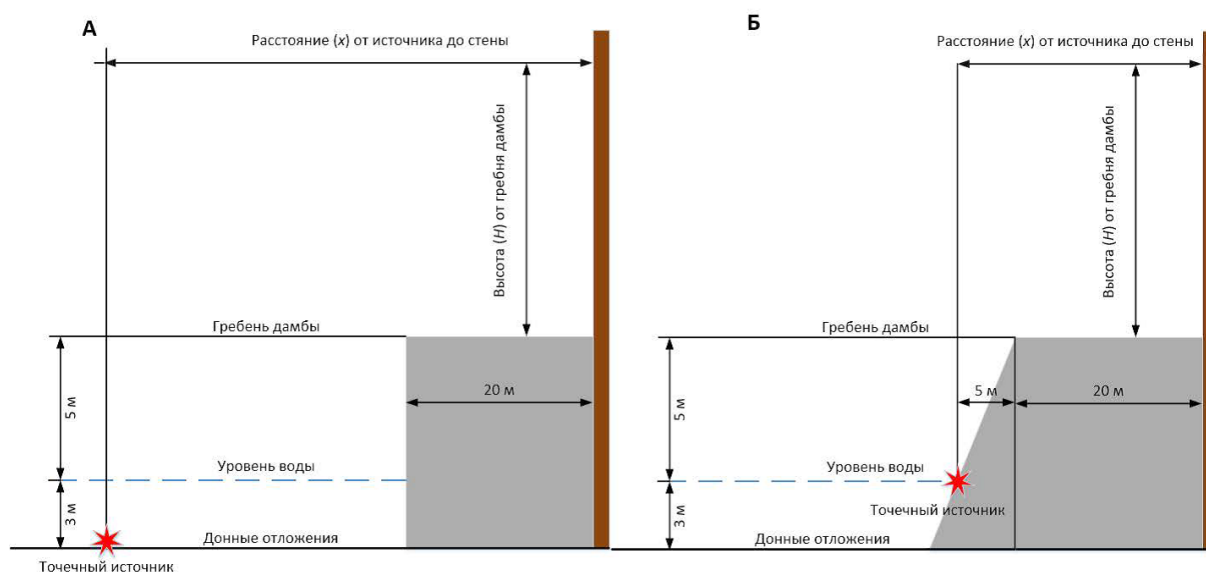


Рис. 7. Расчётная барьерная геометрия для точечного источника, расположенного на поверхности оголённых донных отложений (А) и на уровне уреза воды на боковом откосе дамбы (Б) МП

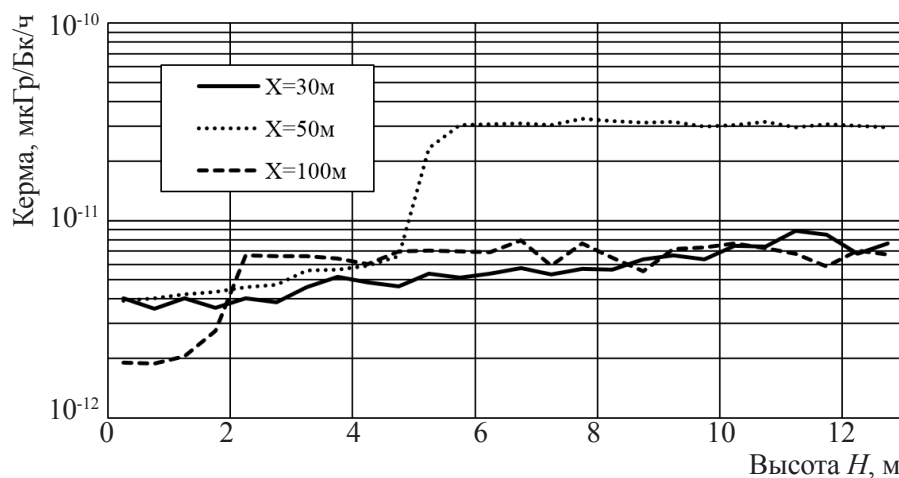


Рис. 8. Распределение кермы в воздухе по высоте стены зернохранилища (от гребня дамбы), для различных расстояний $X=30, 50$ и 100 м от точечного источника, расположенного на поверхности оголённых ДО МП (для дамбы прямоугольной формы)

защитного барьера была максимально приближена к реальной трапециевидальной форме дамбы МП путём учёта откоса дамбы в верхнем бьефе (рис. 7Б). Выполненные расчёты показали, что при любом положении точечного

ИГИ на боковом откосе верхнего бьефа дамбы распределения кермы по высоте стены остаются практически неизменными (в пределах расчётной статистической погрешности) и хорошо соответствуют экспериментальным

данным. На рис. 9, в качестве примера, приведено такое высотное распределение для случая, когда ТИ расположен на урезе воды дамбы МП. Немонотонный (волнообразный) характер расчётных распределений на рис. 8, 9 и 12 обусловлен недостаточной статистикой выполненных расчётов, что, впрочем, не изменяет общие выводы.

Качественную оценку значения накопленной кермы (K) перед стеной зернохранилища за период промывки ($T=2$ сут) выполним при следующих предположениях:

- среднее значение поверхностной плотности активности на дне водоёма В-4 при $X=30$ м равно $\sigma_{1951} \approx 2,0$ ГБк/м² (см. раздел "Загрязнение донных отложений Метлинского пруда");
- площадь оголённой поверхности ДО при $X=30$ м примем равной $S=200$ м²;
- значение кермы для ТИ при $X=30$ м и $H=9$ м равно $k = 7 \cdot 10^{-12}$ мкГр/Бк/ч (рис. 9).

Несмотря на качественный характер расчётной оценки, полученный результат следует признать вполне реалистичным (табл. 1):

$$K(X=30 \text{ м}, H=9 \text{ м}) = \sigma_{1951} \cdot S \cdot k \cdot T = 0,5 \text{ Гр.}$$

Для рассматриваемого расчётного варианта были рассчитаны средние энергии γ -квантов для точек по высоте стены, где проводились отборы проб кирпичей:

- для образцов G13 и G14 ($H=2,15$ м), $E=0,132$ МэВ;
- для образца G7 ($H=8,9$ м), $E=0,151$ МэВ;
- для образцов G1/2 ($H=13,05$ м), $E=0,167$ МэВ.

Хорошее совпадение расчётных значений средней энергии γ -квантов по всей высоте стены означает, что проникающая способность γ -излучения на разных отметках стены одинакова, и градиенты относительных распределений мощности поглощённой дозы по глубине кирпича тоже должны быть одинаковыми.

На рис. 10 приведено сравнение экспериментальных данных по поглощённой дозе по глубине кирпича с расчётным распределением поглощённой дозы по глубине кирпича для точечного изотропного источника с энергией $E=0,132$ МэВ, расположенного на расстоянии 10 см от кирпича [5].

ВАРИАНТНЫЕ РАСЧЁТЫ С НЕСКОЛЬКИМИ БАРЬЕРАМИ

Этот тип расчётов соответствует ситуации, когда водоём В-4 полностью или частично заполнен водой, ТИ излучения находится по оси АА (рис. 5) на уровне береговой полосы водоёма, а дополнительным экранирующим барьером является кольцевая дамба (рис. 11).

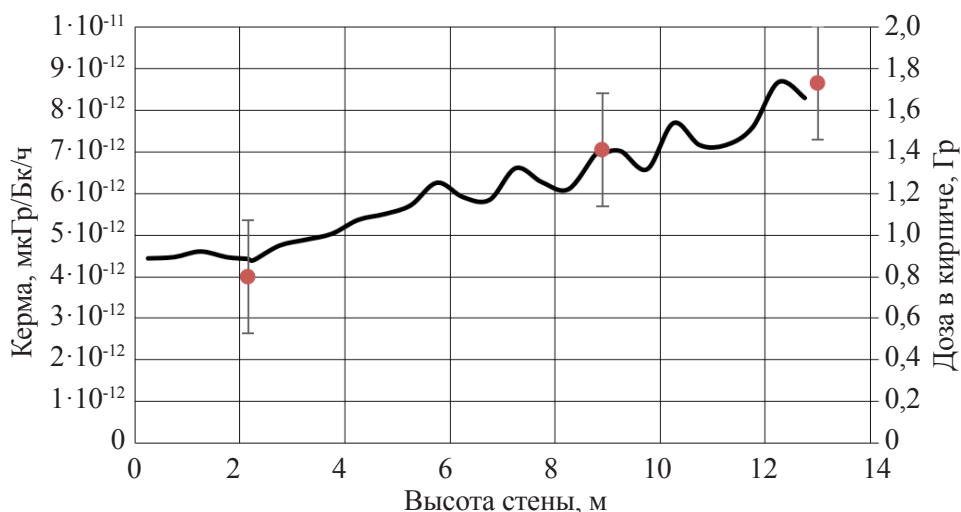


Рис. 9. Расчётное распределение кермы в воздухе по высоте стены зернохранилища от излучения точечного источника, расположенного на урезе воды откоса дамбы МП (кривая), в сравнении с экспериментальными данными о НД в кирпичах (табл. 1) [5]

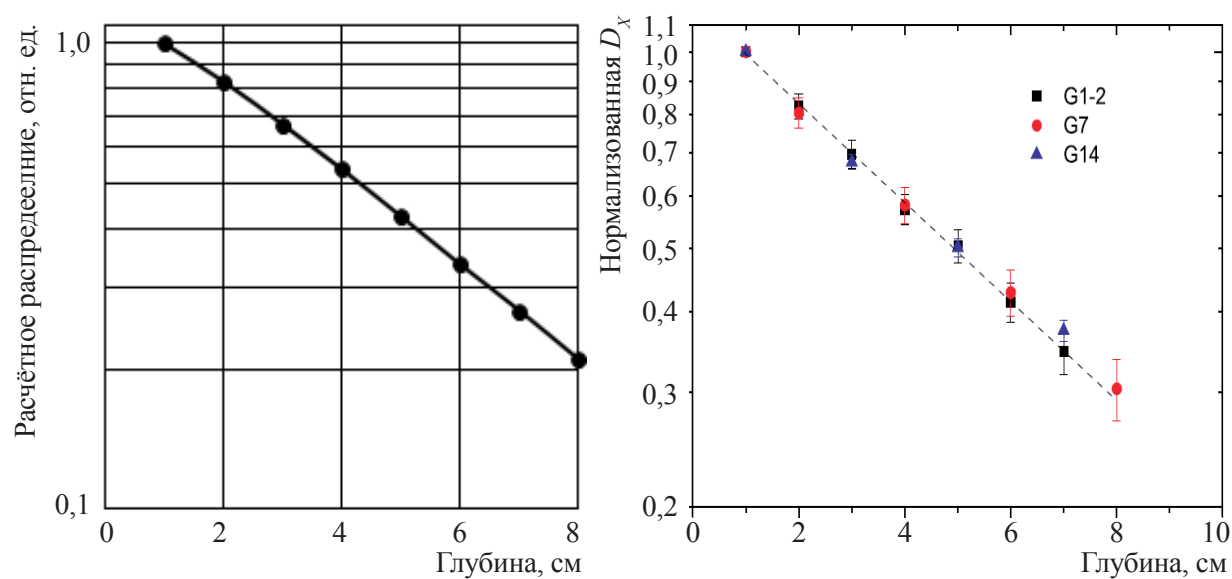


Рис. 10. Относительное распределение поглощённой дозы по глубине кирпича от точечного изотропного источника с энергией $E = 0,132$ МэВ, расположенного на расстоянии 10 см от поверхности кирпича (слева), и соответствующее экспериментальное распределение (справа) [5]

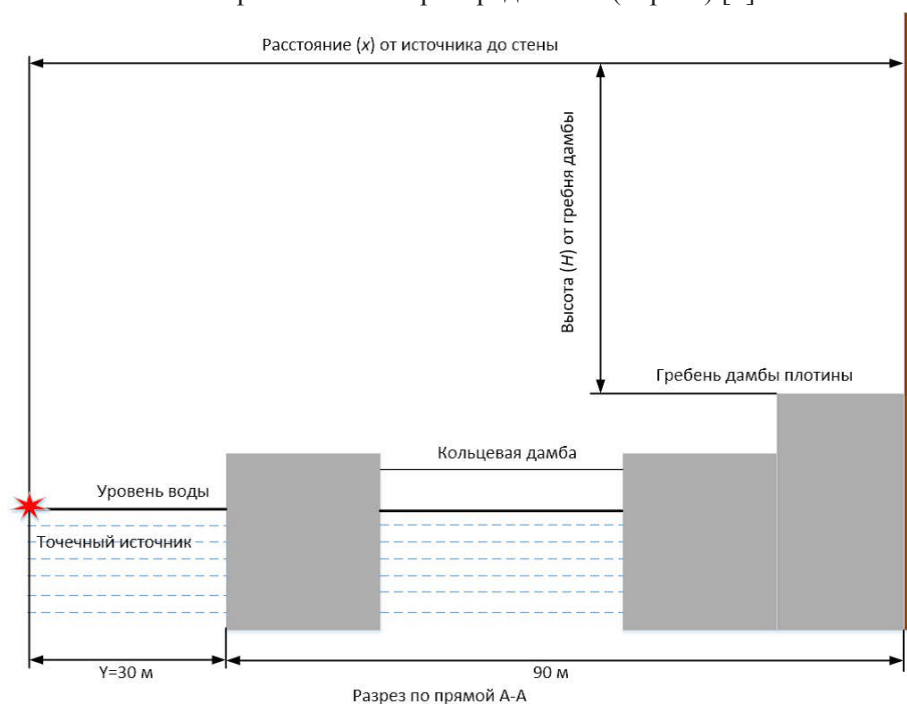


Рис. 11. Расчётная барьерная геометрия для точечного источника, расположенного на урезе воды правого берега МП (сечение А-А на рис. 5)

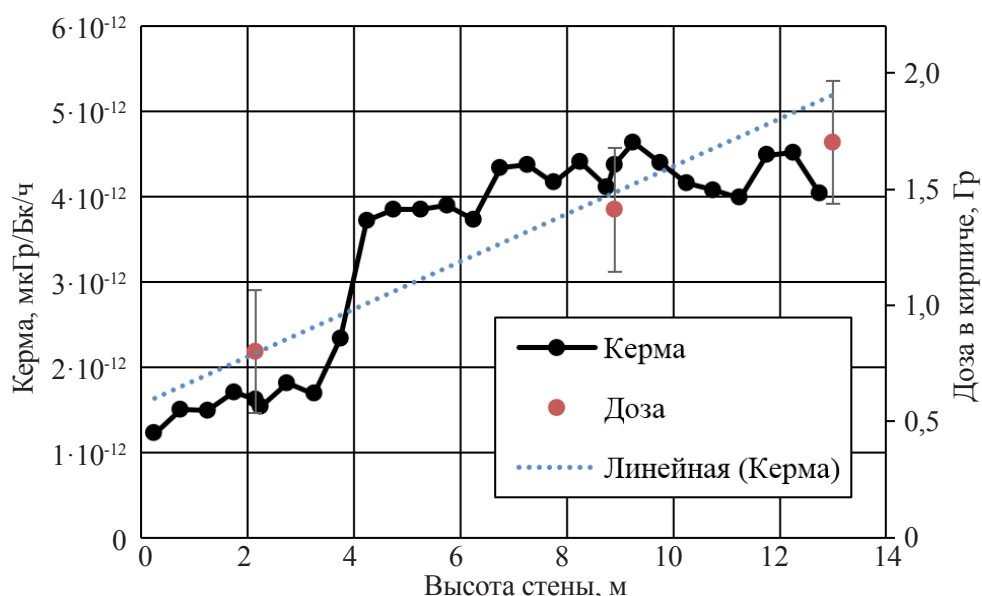


Рис. 12. Распределение кермы в воздухе по высоте стены зернохранилища от гребня дамбы (для $X=120$ м, $Y=30$ м) от точечного источника, расположенного на береговой полосе МП, в сравнении с экспериментальными данными о накопленной дозе в кирпичах (табл. 1) [5]

На рис. 12 приведено сравнение относительных распределений расчётных (керма) и экспериментальных (поглощённой дозы) данных [5] по высоте здания зернохранилища в с. Метлино при $X=120$ м и при расстоянии от ТИ до первого кольцевого барьера $Y=30$ м. Анализ рис. 12 позволяет отметить удовлетворительное (в пределах экспериментальной погрешности) совпадение градиента линейного тренда расчётного распределения кермы в воздухе с экспериментальным распределением поглощённой дозы в кирпичах. Ступенчатое возрастание значения кермы при $H=4$ м (до 2 раз), как и на рис. 8, обусловлено неполным (частичным) экранированием прямого γ -излучения защитным барьером (кольцевой дамбой). Интересно отметить, что расчётные значения кермы от ТИ на поверхности стены при $H=2$ м получились:

- для безбарьерной геометрии при $R=30$ м $k = 80 \cdot 10^{-12}$ мкГр/Бк/ч (рис. 3);
- для размещения ИГИ на боковом откосе нижнего бьефа плотины МП при $X=30$ м $k = 4,5 \cdot 10^{-12}$ мкГр/Бк/ч (рис. 9);
- для двухбарьерной геометрии при $X=120$ м $k = 1,7 \cdot 10^{-12}$ мкГр/Бк/ч (рис. 12).

ВЫВОДЫ

1. Дозиметрические и эпидемиологические исследования когорты населения р. Течи имеют важнейшее фундаментальное значение, поскольку направлены на уточнение значений радиационных рисков при пролонгированном облучении.

2. Существующие оценки доз внешнего облучения жителей с. Метлино на р. Тече за 1949–1956 гг., основанные на результатах ретроспективной термолюминесцентной дозиметрии (ТЛД), характеризуются противоречивостью и высокой неопределённостью.

3. Основная причина имеющихся проблем внешней дозиметрии связана с неопределённостью параметров пространственного распределения источников γ -излучения в районе с. Метлино, существовавших в прошлом (1949–1956 гг.) и существующих в настоящее время (2007–2012 гг.).

4. Приведены результаты расчётов (методом Монте-Карло) переноса γ -квантов в атмосфере от точечного источника для геометрии Метлинского пруда. Расчёты выполнены для

источника, расположенного на границе раздела двух сред ("воздух-вода" или "воздух-почва"), для различных вариантов положения источника при отсутствии или наличии защитных экранов, в качестве которых выступает дамба плотины и/или кольцевая дамба промежуточного пруда.

5. Показано, что основным источником γ -излучения в районе стены зернохранилища с. Метлино, существовавшим в прошлом, может быть оголённая поверхность донных отложений на боковом откосе верхнего бьефа дамбы Метлинского пруда в период ежедневного частичного сброса воды для приведения в движение водяной мельницы или в период "промывки" водоёма в октябре 1951 г. В настоящее время основным источником γ -излучения является заболоченная береговая полоса в районе дамбы плотины и, возможно, на юго-восточном берегу пруда.

6. Показано, что такие геометрические положения источника γ -излучения позволяют объяснить все известные экспериментальные распределения современной мощности дозы (переносной дозиметр) и накопленной дозы (метод ТЛД) в районе с. Метлино. Полученные результаты позволяют более корректно оценить техногенную дозу внешнего облучения жителей с. Метлино.

ЛИТЕРАТУРА

1. 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. // Библиотека журнала "Вопросы радиационной безопасности". № 1. – Озёрск, 2002. – 176 с.
2. Мокров Ю.Г. Реконструкция и прогноз радиоактивного загрязнения реки Течи. Часть II. Реконструкция радиационной обстановки и оценка дозы облучения населения прибрежных районов р. Течи за период 1949–1954 гг. – Озёрск: РИЦ ВРБ, 2003. – 110 с.
3. Последствия радиоактивного загрязнения реки Течи / Под редакцией А.В. Акеева. – Челябинск: "Книга", 2016. – 400 с.
4. Woda C., Hiller M., Ulanowski A. et al. Luminescence dosimetry for evaluation of the external exposure in Metlino, upper Tcha River valley, due to the shore of the Metlinsky Pond: A feasibility study // J. of Environmental Radioactivity. – 214–215(2020)106152.
5. Hiller M., Woda C., Degteva M. et al. External dose reconstruction at the shore of the Metlinsky Pond in the former village of Metlino (Tcha River, Russia) based on environmental surveys, luminescence measurements and radiation transport modelling // Radiation and Environmental Biophysics. – 61(2022)87–109.
6. Ulanowski A., Hiller M., Woda C. Absorbed doses in bricks and TL-dosimeters due to anthropogenic and natural environmental radiation sources // Radiation Measurements. – 140(2021)106458.
7. Мокров Ю.Г., Стукалов П.М., Мартюшов В.З. К вопросу об оценке доз внешнего облучения жителей п. Метлино (р. Теча, Челябинская обл.) в начале 1950-х гг. // Вопросы радиац. безопасности. – 2005. – № 4. – С. 51–57.
8. Мокров Ю.Г., Мокров К.Ю. Особенности формирования радиационной обстановки в прибрежных районах реки Течи на примере Метлинского пруда // Вопросы радиац. безопасности. – 2021. – № 4. – С. 47–61.
9. Семенова Т.В., Житник А.К., Артемьева Е.В. и др. Верификация программы TDMCC для решения задач радиационной защиты от заданных источников нейтронного и фотонного излучения // Супервычисления и математическое моделирование. – 2018. – С. 490–498.
10. Программа TDMCC (Time Dependent Monte Carlo Code). Житник А.К., Рослов В.И., Семенова Т.В. и др. – Свидетельство о государственной регистрации № 2010614412 ФГУП "РФЯЦ ВНИИЭФ".
11. Блохин П.А., Ванев Ю.Е. Верификация программы TDMCC применительно к объектам ядерного наследия" / Сб. тез. докладов 10-й юбилейной Российской конференции "Радиационная защита и радиационная безопасность в ядерных технологиях" г. Москва – г. Обнинск, 22–25 сентября 2015 г. – Обнинск: НОУ ДПО "ЦИПК Росатома", 2015. – С. 12.
12. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99) СП 2.6.1.758–99. – 1999. – 116 с.

УДК 621.039.75

© 2022

ВЫВОД ИЗ ЭКСПЛУАТАЦИИ ЯРОО И РЕАБИЛИТАЦИЯ ЗАГРЯЗНЁННЫХ ТЕРРИТОРИЙ НА ФГУП "ПО "МАЯК" ЗА ПЕРИОД 2016–2021 ГГ.

П.А. Андронников
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"

Приведены основные итоги деятельности предприятия в области вывода из эксплуатации ядерно и радиационно опасных объектов и реабилитации загрязнённых территорий. Показан объём выполненных работ по подготовительному этапу вывода из эксплуатации (проведение комплексных инженерных и радиационных обследований, разработка проектно-сметной документации), демонтажу зданий и сооружений основных производств предприятия и реабилитации загрязнённых территорий радиохимического производства. Отмечено соответствие расчётных и фактических количественных характеристик радиоактивных отходов, образованных в результате демонтажных работ.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: ВЫВОД ИЗ ЭКСПЛУАТАЦИИ, РЕАБИЛИТАЦИЯ ЗАГРЯЗНЁННЫХ ТЕРРИТОРИЙ, РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ, ЗДАНИЯ И СООРУЖЕНИЯ, РАДИОХИМИЧЕСКОЕ ПРОИЗВОДСТВО, РЕАКТОРНОЕ ПРОИЗВОДСТВО, ХИМИКО-МЕТАЛЛУРГИЧЕСКОЕ ПРОИЗВОДСТВО, ЯДЕРНО И РАДИАЦИОННО ОПАСНЫЕ ОБЪЕКТЫ, КОМПЛЕКСНОЕ ИНЖЕНЕРНОЕ И РАДИАЦИОННОЕ ОБСЛЕДОВАНИЕ, РЕАБИЛИТАЦИЯ ЗАГРЯЗНЁННЫХ ТЕРРИТОРИЙ, ПРОЕКТНО-СМЕТНАЯ ДОКУМЕНТАЦИЯ

Начиная с 2016 года в рамках Федеральной целевой программы "Обеспечение ядерной и радиационной безопасности на 2016–2020 годы и на период до 2030 года" (ФЦП ЯРБ-2) [1] на ФГУП "ПО Маяк" началось выполнение широкомасштабных работ по выводу из эксплуатации (ВЭ) ядерно и радиационно опасных объектов (ЯРОО) и реабилитации загрязнённых территорий (РЗТ).

Мероприятиями ФЦП ЯРБ-2 предусмотрен ВЭ 25 зданий и сооружений радиохимического, реакторного и химико-металлургического производств, пяти пунктов хранения жидких радиоактивных отходов (далее – ЖРО) радиохимического производства и РЗТ на четырёх участках территории радиохимического производства.

Работы подготовительного этапа и практические работы по ВЭ ЯРОО осуществлялись в соответствии с Едиными отраслевыми методическими указаниями (ЕОМУ) по организации работ по ВЭ объектов использования атомной энергии (ОИАЭ), утверждённых приказом

Госкорпорации "Росатом" [2]. В соответствии с ЕОМУ подготовительный этап ВЭ включает в себя:

- разработку концепций ВЭ с определением варианта ВЭ;
 - подготовку распорядительных документов об окончательном останове объекта;
 - подготовку решений о ВЭ;
 - разработку программ ВЭ;
 - извлечение радиоактивных отходов (РАО);
 - разработку программ комплексного инженерного и радиационного обследования (КИРО);
 - проведение КИРО;
 - разработку заданий на проектирование (ЗНП) и проектно-сметной документации (ПСД) на ВЭ;
 - получение разрешений Госкорпорации "Росатом" на списание объектов основных средств;
 - получение лицензий на ВЭ.
- Целью данной работы является подго-

товка комплектов документов для выполнения демонтажных работ на зданиях и сооружениях, их последующего списания с бухгалтерского учёта и исключения из единого государственного реестра недвижимости.

КРАТКОЕ ОПИСАНИЕ ЯРОО, ПОДЛЕЖАЩИХ ВЭ

Радиохимическое производство

Здание 131(134) эксплуатировалось в период с 1949 по 1952 гг. и входило в состав отделения 16 объекта "Б". Представляло собой насосную станцию для перекачки и очистки радиоактивных растворов и сброса их в р. Течу. В период с января 1949 г. по февраль 1950 г. здание 131(134) использовалось для очистки кислых и щелочных малоактивных растворов. В мае 1950 г. (после капитального ремонта) здание 131(134) было перепрофилировано на очистку ацетатных растворов. В январе 1952 г. эксплуатация здания 131(134) была прекращена в связи с изменением схемы обращения с жидкими радиоактивными отходами (сокращение сбросов в р. Течу).

Здание 102 эксплуатировалось в период с 1950 по 1978 гг. В здании 102 располагалось отделение 22 объекта "Б", включавшее в себя технологические участки: установку 25-11 и установку 25-17.

Установка 25-11 предназначалась для экстракционного разделения нептуния и плутония и включала в свой состав две экстракционные нитки. Первая нитка использовалась для разделения плутония и нептуния, а вторая – для извлечения плутония.

Первоначально технология была реализована на ацетатно-осадительных методах разделения и очистки. По данной технологии технологический процесс был организован вплоть до 1965 г. В период с 1965 по 1968 гг. в данном технологическом отделении были организованы работы по освоению и внедрению экстракционных процессов очистки и выделения плутония.

Установка 25-17 предназначалась для осаждения плутония из резкстрактов, получаемых на установке 25-11, с дальнейшей прокалкой до диоксида плутония.

Здание 102А входило в состав отделения 22 объекта "Б", работало в составе здания 102, с установкой 25-11 и предназначалось для хранения промежуточных растворов. Для передачи растворов здания 102 и 102А объединены технологической галереей.

Здание 102с эксплуатировалось в период с 1952 по 1993 гг. В 1956 г. была проведена реконструкция здания. В здании 102с смонтированы два горизонтальных аппарата длиной 8000 мм, диаметром 3000 мм; аппараты расположены горизонтально. Аппараты были предназначены для приёма и хранения радиоактивных растворов.

Здание 121 является частью комплекса зданий, предназначенных для хранения высокоактивных пульп (комплекс "С"), полученных в результате выполнения оборонной программы. Здание эксплуатируется с 1948 г. и состоит из надземной и подземной частей. В надземной двухэтажной части размещены щит контроля и управления, вводы воды, пара, сжатого воздуха, вакуум-насосы, приточная и вытяжная вентиляции. В подземной одноэтажной части размещены узел ввода технологических коммуникаций и два монжуса. Узел ввода технологических коммуникаций отключён от действующих коммуникаций завода. Монжусы освобождены от растворов, полностью отключены и законсервированы.

Сооружение 136 эксплуатировалось в период с 1949 по 1952 гг. Резервуар сооружения предназначался для приёма из здания 101 кислых растворов с последующей нейтрализацией и выдачей их в здание 135а.

Сооружение 137 эксплуатировалось в период с 1949 по 1952 гг. и предназначалось для приёма и отстоя канализационных вод объекта "Б" с последующей передачей их самотёком в сооружение 135а.

Здание 135 введено в эксплуатацию в 1948 г. Функциональное назначение – насосная станция. Здание состояло из надземной и подземной частей. В период с 1963 по 1964 гг. надземная часть была разрушена до нулевой отметки и спланирована грунтом. Подземная часть состояла из резервуара насосной станции и машинного зала. До середины января 1952 г. здание служило для приёма низкоактивных растворов из здания 131(134) после очистки,

канализационных и грунтовых вод объекта "Б" через здание 135а и выдачи этих смешанных растворов в р. Течу. 18.01.1952 выдача низкоактивных растворов в р. Течу была прекращена, после чего здание 135 стало служить для приёма и выдачи в р. Течу только канализационных и грунтовых вод объекта "Б".

Сооружение 135а введено в эксплуатацию в 1949 году и представляет собой резервуар цилиндрической формы диаметром 7000 мм и высотой 4500 мм. Сооружение 135а предназначалось для сбора сбросных вод из сборников-коллекторов и для последующей передачи их насосами в водоём В-17. До середины января 1952 г. сооружение 135а служило в качестве дополнительной ёмкости к зданию 135 для приёма очищенных низкоактивных растворов из здания 131(134) и канализационных и грунтовых вод объекта "Б". По мере заполнения рабочего объёма растворы насосами выдавались в р. Течу или самотёком в водоём В-17 в зависимости от их активности. Выдача низкоактивных растворов в р. Течу была прекращена с 18.01.1952, после чего сооружение 135а стало эксплуатироваться только для приёма канализационных и грунтовых вод с объекта "Б" и передачи их насосами здания 135 в р. Течу вплоть до конца 1957 г.

Сооружение 135б введено в эксплуатацию в 1949 г. и представляет собой резервуар цилиндрической формы диаметром 7000 мм и высотой 4500 мм. Сооружение предназначалось для приёма сбросных вод из сборников-коллекторов и последующей передачи их насосами в водоём В-17.

Сооружение 135в введено в эксплуатацию в 1955 году и представляет собой резервуар цилиндрической формы диаметром 3000 мм и высотой 4500 мм. Сооружение предназначалось для приёма и выдачи канализационных вод, грунтовых вод в водоём В-17 при активности, превышающей нормы сброса в р. Течу, или в водоём В-9 через здание 199а при активности, превышающей нормы сброса в водоём В-17.

Здание 199 введено в эксплуатацию в 1958 г. Здание служило для приёма производственных растворов, промышленных, грунтовых вод и вод спецканализации и выдачи их, в зависимости от активности, в водоём В-17 или водоём В-9.

Здание 199а введено в эксплуатацию в

1955 г. Здание действовало с 1955 по 1957 гг. и входило в состав отделения 13 (комплекс "С"). В здании смонтированы два горизонтальных аппарата для приёма и выдачи промышленных растворов из сооружения 135в, дренирования промышленных растворов из канала трубопроводов в приямки каньонов и выдачи промышленных растворов в водоём В-9.

Здание 120/1 входило в состав отделения 13 комплекса "С" и в период 1951–1953 гг. служило для приёма и долговременного хранения высокоактивных растворов. В здании 120/1 смонтированы четыре ёмкости-хранилища (А-1302/1-4) и монжус А-1303.

Здание 120/6 входило в состав отделения 13 комплекса "С" и в период 1951–1953 гг. служило для приёма и долговременного хранения высокоактивных растворов. В 1959 г. в связи с производственной необходимостью ёмкость 120/6 кратковременно использовалась для хранения промвод комплекса 120/4. В здании 120/6 установлен резервуар-хранилище, который представляет собой цилиндрическую сварную ёмкость с плоским днищем без крышки, изготовленную из двух сортов стали. Здание проработало до 1972 г.

Здание 145 введено в эксплуатацию в 1949 г. и проработало до 1982 г. В здании смонтированы два резервуара. Здание предназначалось для приёма и хранения фильтров бывшего отделения 8 здания 101 и для приёма промывных растворов после отмывки аппаратов здания 101. Лантан-фторидные растворы отделения 8 фильтровались через нутч-фильтры с целью очистки основных компонентов от инертных осадков. Фильтрующим элементом нутч-фильтров служила ткань Петрянова.

Здание 172 представляет собой сооружение, состоящее из четырёх объектов: котельная, насосная станция, помещение приёма угля, дробильный комплекс. Здание 172 введено в эксплуатацию в 1951 г. для обеспечения нужд объекта "Б" и работало на бурых углях Челябинского угольного бассейна. Здание проработало до 1959 г. Загрязнение здания обусловлено аварией 1957 г.

Здание 173 введено в эксплуатацию в 1951 г. Здание состоит из двух помещений: склада угля и помещения лебёточной. Здание 173 представляет собой вспомогательное соору-

жение для котельной (здание 172). Загрязнение здания обусловлено аварией 1957 г.

Реакторное производство

Сооружение 626 (проточный газгольдер низкого давления) введено в эксплуатацию в 1965 г. Сооружение предназначалось для выдачи газовой среды, загрязнённой короткоживущими радионуклидами, с целью снижения объёмной активности (ОА) короткоживущих радионуклидов, главным образом инертных радиоактивных газов (ИРГ). Под действием работы вентиляторов, установленных в здании 625, воздушно-газовая смесь поступала в сооружение 626. Внутри сооружение 626 представляет собой лабиринт из бетонных перегородок. Данное конструктивное решение предназначено для увеличения пути прохождения воздушно-газовой смеси и, как следствие, увеличения времени её нахождения в газгольдере. По мере прохождения по бетонному лабиринту, за счёт большой внутренней поверхности сооружения 626 и ламинарного течения воздушно-газовой смеси, поступающий поток обеднялся аэрозольными частицами путём их осаждения на полу и стенках сооружения. Также происходил распад короткоживущих радионуклидов за счёт длительного нахождения воздушно-газовой смеси в газгольдере.

Здание 401Е представляет собой двухэтажное здание с железобетонным каркасом без подвала. Здание 401 Е введено в эксплуатацию в 1987 г. В здании размещено вентиляционное оборудование приточной вентиляции для здания 401А.

Химико-металлургическое производство

Здание 4аС представляет собой одноэтажное подземное складское сооружение. Здание введено в эксплуатацию в 1949 г. и до 1971 г. использовалось для хранения оборотов (технологических остатков после механической и литейной обработки ядерных материалов) литейно-механического производства.

Здание 81А введено в эксплуатацию в 1972 г. Здание предназначено для осуществления технологических процессов, связанных с отмывкой корпусов и начинок фильтров,

разборкой фильтра (разделение корпуса и начинки), фильтрацией образующегося раствора через нутч-фильтр и др.

ПРОВЕДЕНИЕ КИРО

Одной из важнейших работ подготовительного этапа ВЭ является проведение КИРО. По результатам КИРО оформляется отчёт, состоящий из описательной части, результатов инженерного обследования строительных конструкций и оборудования и результатов радиационного обследования с выводами о планируемом образовании РАО от ВЭ и отходов производства и потребления. За период с 2016 по 2021 гг. проведено КИРО 22 ЯРОО и четырёх участков РЗТ:

- на радиохимическом производстве – 18;
- на реакторном производстве – 2;
- на химико-металлургическом производстве – 2.

В рамках проведения КИРО суммарно было обследовано 334 помещения на общей площади 17,2 тыс. м², проведено более 56 тысяч измерений мощности амбиентного эквивалента дозы γ -излучения, плотности потока β -частиц и плотности потока α -частиц (МАЭДГИ, ППБЧ, ППАЧ), отобрано и проанализировано 1543 пробы строительных конструкций, облицовочных материалов, металла, грунта, грунтовых вод, иловых отложений и т.д. Общий строительный объём обследованных зданий и сооружений составил 133,4 тыс. м³. По результатам поверхностного обследования и анализа отобранных проб в результате демонтажа оборудования и строительных конструкций зданий и сооружений планируется к образованию 97,2 тыс. м³ РАО с активностью α -излучающих радионуклидов, включая трансурановые (ТУЭ), – $5,72 \cdot 10^{14}$ Бк и β -излучающих радионуклидов – $1,99 \cdot 10^{14}$ Бк.

Радиохимическое производство

За период с 2016 по 2021 гг. на радиохимическом производстве проведено КИРО 18 ЯРОО (здания 131(134), 102, 102а, 102с, 121, 136, 137, 135, 135а, 135б, 135в, 199, 199а, 120/1, 120/6, 145, 172, 173) и четырёх участков РЗТ. Основные результаты КИРО по зданиям и со-

оружиям радиохимического производства приведены в табл. 1.

Химико-металлургическое производство

За период с 2020 по 2021 гг. на химико-металлургическом производстве проведено КИРО двух ЯРОО (здания 4ас и 81А).

Основные результаты КИРО по зданиям и сооружениям реакторного производства приведены в табл. 2.

Реакторное производство

За период с 2020 по 2021 гг. на реакторном производстве проведено КИРО двух ЯРОО

Таблица 1

Результаты проведения КИРО радиохимического производства

ЯРОО	N _{пом.} , шт.	V _{стр.} , м ³	S _{пом.} , м ²	V _{РАО} , м ³	Активность, Бк	
					α	β
131(134)	13	1880	535	2276	4,82E+11	1,02E+14
102	143	28281	1286	29800	5,63E+14	3,57E+13
102a	23	900	158	936	3,62E+10	3,43E+12
102с	2	558	116	416	5,98E+06	7,20E+08
121	33	4410	285	3070	1,23E+11	2,82E+13
136	1	49	21	40	3,91E+07	1,15E+06
137	3	277	76	884	2,70E+06	1,42E+07
135	3	964	168	1133	3,23E+06	2,18E+07
135a	1	224	44	494	6,05E+05	1,06E+07
135б	1	224	44	530	7,52E+05	1,18E+07
135в	1	74	9	160	3,12E+04	5,94E+07
199	5	717	80	361	2,87E+06	3,12E+08
199a	5	265	101	280	4,86E+03	4,58E+10
120/1	12	22229	1072	16649	5,16E+07	4,25E+12
120/6	2	2371	370	870	8,79E+05	5,49E+09
145	3	743	78	791	5,45E+05	6,17E+09
172	24	29041	6061	25019	8,77E+10	2,45E+13
173	2	13353	2159	9561	4,87E+09	3,59E+11
ИТОГО	277	106560	12663	93270	5,64E+14	1,99E+14

Примечание: N_{пом.} – количество помещений в здании/сооружении; V_{стр.} – строительный объём здания/сооружения; S_{пом.} – площадь помещений здания/сооружения (площадь застройки); V_{РАО} – расчётный объём РАО в результате проведения КИРО; α, β – расчётная активность радионуклидов.

Таблица 2

Результаты проведения КИРО химико-металлургического производства

ЯРОО	N _{пом.} , шт.	V _{стр.} , м ³	S _{пом.} , м ²	V _{РАО} , м ³	α, Бк	β, Бк
4ас	8	448	144	36	3,94E+09	0,00E+00
81А	36	6551	576	639	8,74E+12	0,00E+00
ИТОГО	44	6999	720	675	8,74E+12	0,00E+00

Примечание: то же, что и в табл. 1.

Таблица 3

Результаты проведения КИРО реакторного производства

ЯРОО	N _{пом.} , шт.	V _{стр.} , м ³	S _{пом.} , м ²	V _{РАО} , м ³	α, Бк	β, Бк
626	1	12600	2997	2573	1,35E+07	2,98E+10
401E	12	7192	739	645	3,24E+03	1,98E+07
ИТОГО	13	19792	3736	3218	1,35E+07	2,98E+10

Примечание: то же, что и в табл. 1.

Таблица 4

Результаты ВЭ ЯРОО

Наименование объекта (ЯРОО)	Объём V _{стр.} , м ³	Площадь S _{терр.} , м ²	Объём V _{РАО} , м ³	Активность A _Σ , Бк	Объём V _{грунта} , м ³
136	49	21	139	2,53E+11	265
137	277	76	789	1,44E+12	1390
135	964	168	1429	4,99E+12	3830
135a	224	44	332	1,16E+12	888
135б	224	44	332	1,16E+12	888
135в	74	9	110	3,85E+11	296
199	717	80	361	4,99E+12	692
199a	265	101	394	1,37E+12	1050
145	743	78	791	4,15E+11	1030
ИТОГО	3537	621	4677	1,62E+13	10300

Примечание: V_{стр.} – строительный объём здания/сооружения; S_{терр.} – площадь реабилитированной территории; V_{РАО} – фактический объём РАО в результате ВЭ; A_Σ – суммарная активность радионуклидов; V_{грунта} – объём привозного чистого грунта для реабилитации территории.

(здание 401E и сооружение 626). Основные результаты КИРО по зданиям и сооружениям реакторного производства приведены в табл. 3.

ВЫПОЛНЕНИЕ РАБОТ ПО ВЭ ЯРОО

Радиохимическое производство

За период с 2020 по 2021 гг. в полном объёме выполнены демонтажные работы по девяти ЯРОО (сооружения 136, 137, 135a, 135б, 135в, здания 135, 199, 199a, 145) с реабилитацией территории. По двум ЯРОО (здания 131(134) и 121) выполнен первый этап работ по ВЭ в части демонтажа надземных частей зданий (рис. 1–3).

В рамках полного демонтажа девяти ЯРОО произведена механизированная разборка 3,5 тыс. м³ строительного объёма зданий и сооружений, образовано 4,7 тыс. м³ РАО суммарной активностью $1,62 \cdot 10^{13}$ Бк, включая уда-

ление загрязнённого грунта, реабилитировано 620 м² территории путём завоза и планировки чистого грунта в объёме 10,3 тыс. м³.

Основные результаты выполнения демонтажных работ по зданиям и сооружениям приведены в табл. 4.

В результате сравнения расчётных показателей по образованию РАО в результате проведения КИРО и фактически поставленных на учёт РАО в системе государственного учёта и контроля отмечается сравнительно небольшое отклонение по объёму РАО и значительное отклонение по активности РАО. Это объясняется тем, что значительную часть РАО составляет выемный грунт прилегающей к зданиям и сооружениям территории и его загрязнение достаточно неравномерно, как это показано в КИРО.

За период с 2016 по 2021 гг. по 14 ЯРОО (девять из них не стояли на балансовом учёте



Рис. 1. Выполнение демонтажных работ сооружений 136 и 137.
Показана разработка котлована до верхней отметки сооружения 137 и демонтаж перекрытия

на ФГУП "ПО "Маяк") и четырём участкам РЗТ радиохимического производства, двум ЯРОО реакторного и химико-металлургического производств объём работ подготовительного этапа завершён полностью. По 21 ЯРОО радиохимического производства и двум ЯРОО реакторного и химико-металлургического производств объём работ выполнен до стадии ЗНП и ПСД.

В рамках подготовительного этапа работ ВЭ за период с 2020 по 2021 гг. из четырёх пунктов хранения РАО были извлечены. На радиохимическом производстве из зданий 120/1, 120/3 и 120/4 извлечены 8810 м³ ЖРО с последующим упариванием и частичным остекловыванием кубового остатка в 2020 г. до

останова печи ЭП-500. Остальной объём кубового остатка размещён на хранение в действующих ёмкостях-хранилищах. На химическом заводе в рамках подготовки к ВЭ промышленного уран-графитового реактора АИ из пункта долговременного хранения удаляемых РАО "Хранилище № 15", являющимся помещением вагон-контейнерной здания 701, извлечено 12 м³ твёрдых РАО в виде 81 ёмкости с облучёнными материалами. Ёмкости размещены в десяти контейнерах КМЗ с пересыпкой пустот песком. По согласованию технологических карт РАО приведены к критериям приемлемости для их захоронения и размещены в здании 133 ФГУП "ПО "Маяк" до пуска в эксплуатацию



Рис. 2. Выполнение демонтажных работ здания 199.
Показан результат демонтажа надземной части здания специализированной техникой с применением сменных насадок (гидромолот, гидроножницы)

приповерхностного пункта захоронения РАО 3 и 4 классов в г. Озёрске.

РЕАБИЛИТАЦИЯ ЗАГРЯЗНЁННОЙ ТЕРРИТОРИИ

В период с 2018 по 2021 гг. на территории радиохимического завода в рамках государственных контрактов проведены работы по реабилитации РЗТ. Всего в рамках ФЦП ЯРБ-2 планируется выполнить реабилитацию четырёх участков РЗТ общей площадью 225 тыс. м².

В 2018 г. были произведены работы по реабилитации участка № 4 РЗТ. Площадь ре-

абилитируемого участка составила 30 тыс. м². На площади 10 тыс. м² произведена планировка участка завезённым чистым грунтом объёмом 6,7 тыс. м³. На площади 30 тыс. м² произведена планировка участка с созданием корнеобразующего слоя грунта объёмом 3,4 тыс. м³.

В 2019 г. были произведены работы по реабилитации части участка № 3 РЗТ. Площадь реабилитируемого участка составила 35 тыс. м². На данной площади произведена планировка участка завезённым чистым грунтом объёмом 17,5 тыс. м³, после чего произведена планировка участка с созданием корнеобразующего слоя грунта объёмом 6,4 тыс. м³.



Рис. 3. Выполнение демонтажных работ надземной части здания 121.
Показан демонтаж монтажного зала

В 2020 г. были произведены работы по реабилитации второй части участка № 3 РЗТ завода 235. Площадь реабилитируемого участка составила 36,9 тыс. м². На данной площади произведена планировка участка завезённым чистым грунтом объёмом 22,1 тыс. м³, после чего произведена планировка участка с созданием корнеобразующего слоя грунта объёмом 7,4 тыс. м³.

В 2021 г. были произведены работы по реабилитации части участка №1 РЗТ завода 235. Площадь реабилитируемого участка составила 40 тыс. м². На данной площади произведена отсыпка экранирующим слоем грунта объёмом 25 тыс. м³, планировка участка завезённым чистым грунтом объёмом 16 тыс. м³, после чего произведена планировка участка с созданием корнеобразующего слоя грунта объёмом 4 тыс. м³.

Общие итоги работ по реабилитации РЗТ

радиохимического производства приведены в табл. 5.

ОБРАЩЕНИЕ С РАО ОТ ВЭ

В результате выполнения демонтажных работ, реабилитации территории и подготовительных работ по КИРО на радиохимическом производстве образовано 5,4 тыс. м³ РАО суммарной активностью $1,65 \cdot 10^{13}$ Бк, в том числе в соответствии с постановлением [3]:

ОНРАО – 3,1 тыс. м³ суммарной активностью $4,16 \cdot 10^{11}$ Бк;

НАО – 1,9 тыс. м³ суммарной активностью $5,31 \cdot 10^{12}$ Бк;

САО – 0,4 тыс. м³ суммарной активностью $1,08 \cdot 10^{13}$ Бк.

Основной номенклатурой образованных РАО являются:

– строительный мусор (бой строитель-

Таблица 5

Результаты реабилитации РЗТ

Год	Площадь РЗТ, тыс. м ²	Объём грунта, тыс. м ³			ИТОГО
		Экранирующий слой грунта	Завезённый чистый грунт	Корнеобразующий слой грунта	
2018	30,0	0,0	6,7	3,4	10,1
2019	35,0	0,0	17,5	6,4	23,9
2020	36,9	0,0	22,1	7,4	29,5
2021	40,0	25,0	16,0	4,0	45,0
ИТОГО	141,9	25,0	62,3	21,2	108,5



Рис. 4. Погрузка Биг-бэгов с РАО в виде загрязнённого грунта

ных конструкций);

- конструкционные материалы (кровля, стекло, древесина);
- загрязнённый грунт;
- металлические отходы.

По результатам сортировки все РАО, кроме металлических конструкций, упакованы в Биг-бэги (рис. 4), либо полиэтиленовую плёнку и размещены в пункте размещения особых РАО "полигон ПЗ ТРО В-9".

АНАЛИЗ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

По результатам выполненных работ, включающих как подготовительный этап к ВЭ, так и демонтажные работы с последующим обращением с РАО и отходами производства и потребления в рамках выполнения мероприятий ФЦП ЯРБ-2, следует отметить, что с 2016 по 2021 гг. весь комплекс работ выполнен персоналом предприятия без привлечения сторонних организаций. Данный комплекс работ на предприятии выполнялся впервые и был освоен успешно как новый вид деятельности. Для поддержания темпов выполнения работ предприятие своевременно обеспечило структурные подразделения специализированной техникой и материально-техническими ресурсами для выполнения работ.

ВЫВОДЫ

За период с 2016 по 2021 гг. в рамках всего комплекса работ по ВЭ ЯРОО в соответствии с ФЦП ЯРБ -2 выполнено следующее:

1. Проведено КИРО для 22 ЯРОО и четырёх участков РЗТ.
2. Подготовлена проектно-сметная до-

кументация на вывод из эксплуатации для 8 ЯРОО.

3. Выведено из эксплуатации 9 ЯРОО.

4. Реабилитировано 142 тыс. м² территории радиохимического завода предприятия. Произведена отсыпка завезённым чистым грунтом объёмом 109 тыс. м³.

5. В результате выполнения работ по ВЭ ЯРОО и реабилитации РЗТ образовано и размещено на хранение 5,4 тыс. м³ РАО.

ЛИТЕРАТУРА

1. Федеральная целевая программа "Обеспечение ядерной и радиационной безопасности на 2016–2020 годы и на период до 2030 года".
2. Единые отраслевые методические указания по организации работ по выводу из эксплуатации объектов использования атомной энергии.
3. Постановление Правительства Российской Федерации от 19.10.2012 № 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".

УДК 546.791+ 661.183.123

© 2022

СОРБЦИОННОЕ ВЫДЕЛЕНИЕ УРАНА ИЗ АЗОТНОКИСЛЫХ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ РАСТВОРОВ С ПРИМЕНЕНИЕМ КАТИОНИТОВ МАРКИ PUROLITE

*Е.В. Лызлова, А.В. Глухова, А.В. Конников, М.А. Бирюкова
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Исследованы сорбционные характеристики катионитов марки Purolite по отношению к урану в азотнокислых растворах. Определены коэффициенты распределения урана на катионитах в зависимости от кислотности раствора, кинетические параметры процесса сорбции урана, обменные ёмкости катионитов. Изучены процессы сорбции и десорбции урана в динамическом режиме на имитационных и технологических растворах. Показано, что карбоксильные катиониты Purolite C 104 FL, Purolite C 106 и Purolite C 115 являются перспективными материалами для выделения урана из азотнокислых технологических растворов.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: УРАН, КАТИОНИТЫ, СОРБЦИЯ, ДЕСОРБЦИЯ, ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ АЗОТНОКИСЛЫЕ РАСТВОРЫ, ОБМЕННАЯ ЁМКОСТЬ, КОЭФФИЦИЕНТ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ

На многих действующих предприятиях атомной отрасли в результате производственной деятельности образуется большое количество технологических азотнокислых растворов с невысоким содержанием ядерных материалов и значительным количеством стабильных примесей. Данные растворы не относятся к жидким радиоактивным отходам и подлежат дальнейшей переработке с целью выделения ценных компонентов. Для выделения и концентрирования актинидов из подобных растворов целесообразно использовать сорбционные материалы, способные избирательно сорбировать радионуклиды из водных сред сложного солевого состава. В течение многих лет на предприятиях ядерно-энергетического комплекса традиционно использовались материалы отечественного производства [1]. Сорбционные процессы извлечения актинидов из технологических азотнокислых растворов с использованием данных материалов на протяжении многих лет обеспечивали удовлетворительные технологические показатели. Однако с определённого момента времени их выпуск по тем или иным причинам был прекращён. На рынке появился широкий ассортимент синтетических ионообменных материалов направ-

ленного синтеза иностранного производства на основе высокомолекулярных органических соединений, не уступающих отечественным аналогам по физико-химическим характеристикам и сорбционным свойствам.

С целью замены традиционно используемых на производстве отечественных ионитов в течение нескольких лет проводились работы по подбору новых сорбционных материалов зарубежного производства [2–6].

Так, для выделения урана из азотнокислых технологических растворов были исследованы сорбционные материалы, синтезированные компанией PUROLITE LTD (Великобритания), с целью замены снятого с производства катионита СГ-1.

Основные паспортные характеристики исследованных образцов катионитов марки Purolite, указанные производителем, приведены в табл. 1.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Перед проведением экспериментов образцы катионитов выдерживали в дистиллированной воде при объёмном соотношении твёрдой и жидкой фаз (Т : Ж), равном 1 : 3, до полного

Таблица 1

Основные паспортные характеристики исследованных катионитов

Наименование катионита марки Purolite	Функциональная группа	Размер гранул, мм	Насыпная плотность воздушно-сухого образца, г/см ³	ПОЕ, г-экв/дм ³	Коэффициент набухания в воде
S 957	сульфофосфоновая	0,4–0,7	0,662	1,8	1,7
D 5041	фосфоновая	0,4–1,0	0,514	1,5	1,4
C 100	сульфоновая	0,8–1,0	0,696	2,0	1,6
C 104 FL	карбоксильная	0,5–1,0	0,770	4,5	1,7
C 104 Plus	карбоксильная	0,3–1,6	0,673	4,7	1,8
C 106	карбоксильная	0,2–1,6	0,750	2,7	2,6
C 107	карбоксильная	0,2–1,6	0,648	3,6	2,3
C 115	карбоксильная	0,3–1,6	0,612	3,5	1,4

набухания. Набухшие образцы обрабатывали раствором азотной кислоты с молярной концентрацией $2,0 \pm 0,5$ моль/дм³ при $T : Ж = 1 : 10$ в течение 3 ч в статическом режиме. Затем образцы промывали дистиллированной водой до достижения в фильтрате значения pH среды, равного $5,0 \pm 0,5$, и высушивали до постоянного веса на воздухе.

Для оценки потенциальной сорбционной способности катионитов снимали ИК-спектры поглощения с использованием ИК-Фурье спектрометра TENSOR 27 с приставкой НПВО (однократного отражения) с алмазным кристаллом Platinum-ATR, позволяющего определить структуру сорбента, в частности, наличие функциональных групп и изомеров в структуре исследуемых образцов. Проводили сравнительный анализ ИК-спектров поглощения образцов карбоксильных катионитов в H⁺-форме.

Сорбцию урана в статических условиях проводили путём постоянного перемешивания подготовленной навески катионита с аликвотой имитационного раствора при $T : Ж = 1 : 50$ в течение 3 ч. Концентрация урана в имитационном растворе при определении коэффициентов распределения урана составляла $0,6 \pm 0,1$ г/дм³, при определении значений статической обменной ёмкости – от 0,03 до 10 г/дм³. Кислотность раствора при определении коэффициентов распределения урана варьировалась в диапазоне значений pH от 0,3 до 5,5. Значения статической обменной ёмкости катионитов определяли в условиях оптимальной кислотности.

Концентрацию урана в растворах измеряли фотометрическим методом анализа по окрашенному внутрикомплексному соединению шестивалентного урана с арсеназо III при значениях pH от 5,0 до 5,5 в присутствии трилона Б, концентрацию азотной кислоты – потенциометрическим методом анализа. По окончании процесса сорбции твёрдую и жидкую фазу разделяли и проводили измерение концентрации урана в растворе.

По результатам анализа рассчитывали величину коэффициента распределения урана K_d (см³/г) и статическую обменную ёмкость COE (мг/г) по формулам:

$$K_d = \frac{C_0 - C_t}{C_t} \cdot \frac{V}{m},$$

где C_0 , C_t – массовые концентрации урана в исходном растворе и в растворе, полученном по окончании процесса сорбции, мг/дм³;

V – объём раствора, см³;

m – масса воздушно-сухого сорбента, г.

$$COE = (C_0 - C_t) \cdot \frac{V}{m}.$$

При определении кинетических параметров сорбционного процесса были проведены опыты, в которых жидкую фазу отбирали и анализировали через разные промежутки времени. Массовую концентрацию урана в имитационном растворе подбирали таким образом, чтобы в условиях эксперимента в процессе сорбции обеспечивать полное насыщение сорбента

ураном. По полученным данным рассчитывали степень обмена F урана по формуле:

$$F = \frac{C_0 - Ct}{C_0 - C_\infty},$$

где C_∞ – массовая концентрация урана в равновесном растворе, мг/дм³.

Для значения F , равного 0,5, находили соответствующее время контакта сорбента с раствором – время полубмена ($\tau_{1/2}$). Предполагая, что для эффективной сорбции в динамическом режиме достаточно обеспечить продолжительность контакта сорбента с раствором, равную $10 \cdot \tau_{1/2}$, возможную максимальную скорость пропускания раствора через сорбционную колонку в динамическом режиме Q (колоночный объём (к.о.)/ч), при которой обеспечивается полное извлечение компонента, рассчитывали по формуле:

$$Q = \frac{V \cdot \rho_{\text{насып}}}{m \cdot 10 \cdot \tau_{1/2}},$$

где $\rho_{\text{насып}}$ – насыпной вес воздушно-сухого сорбента, мг/см³;

$\tau_{1/2}$ – период полубмена, ч.

Для исследования процесса извлечения урана на катионитах в динамическом режиме использовали технологические азотнокислые растворы с массовой концентрацией урана не более 1 г/дм³ значением pH, равным 1. В состав технологических растворов входят ионы кальция, натрия, аммония, хрома (с массовой концентрацией не более 6 г/дм³), а также оксалат-ионы (с массовой концентрацией не более 1 г/дм³).

Кислотность технологических растворов до оптимального значения, установленного в статических экспериментах, корректировали путём добавления водного раствора аммиака. Затем растворы фильтровали на бумажном фильтре типа "синяя лента".

Извлечение урана проводили на двух последовательно соединённых колонках, заполненных катионитом. Отношение высоты слоя сорбента к его диаметру составляло $H : D = 8 : 1$. Объём катионита в каждой колонке составлял от 3 до 10 см³. Растворы подавали сверху вниз. Скорость фильтрации раствора на операции сорбции составляла 1 к.о./ч. Фильтрат собирали по фракциям и измеряли концентрацию урана в

каждой фракции. Извлечение урана проводили до его массовой концентрации в фильтрате не более 1 мг/дм³ ("проскок"). Для вытеснения исходного раствора катиониты перед десорбцией промывали дистиллированной водой.

По результатам динамических экспериментов определяли:

– значение ёмкости катионита до "проскока" урана в фильтрат (ЕДП) – концентрация урана в фазе сорбента, при которой концентрация урана в фильтрате не превышает регламентированное значение,

– значение полной динамической обменной ёмкости (ПДОЕ) – концентрация урана в фазе сорбента, при которой концентрации урана в исходном растворе и фильтрате равны.

Десорбцию урана проводили отдельно с каждой колонки раствором азотной кислоты с концентрацией $2,0 \pm 0,5$ моль/дм³. Десорбирующий раствор в объёме 1 к.о. заливали в колонку, выдерживали в течение 1 ч и сливали. В таком режиме проводили не менее пяти контактов. После десорбции для подготовки к следующему циклу колонки промывали дистиллированной водой до достижения в фильтрате значения pH, равного $5,0 \pm 0,5$.

Степень десорбции ϕ (%) рассчитывали по формуле:

$$\phi = \frac{m_t}{m_0} \cdot 100,$$

где m_t – масса десорбированного урана, мг;
 m_0 – масса урана на сорбенте, мг.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

ИК-спектры поглощения карбоксильных катионитов в H⁺-форме, представленные на рис. 1, показывают, что в области волновых чисел от 3000 до 2800 см⁻¹ катиониты марки Purolite имеют слабые полосы поглощения, соответствующие валентным колебаниям групп СН-, СН₂-, СН₃-, характерным для дивинилбензола, метакриловой и полиакриловой кислот. Небольшие отличия спектра образца катионита С 115 в области волновых чисел от 1500 до 1100 см⁻¹ и от 800 до 500 см⁻¹ от спектров других образцов, по-видимому, связаны с типом замещения в бензольном кольце. В целом исследуемые образцы катионитов марки Purolite имеют схожие ИК-спектры поглощения.

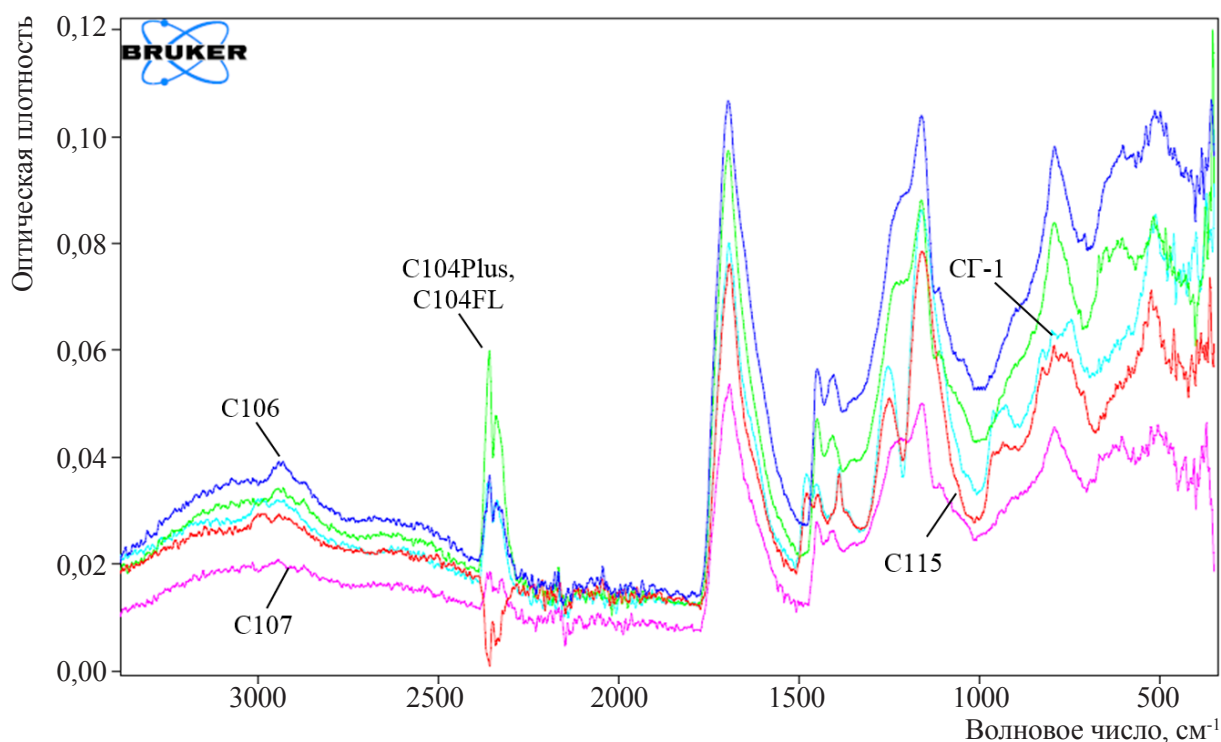


Рис. 1. ИК-спектры карбоксильных катионитов марки Purolite и СГ-1 в H⁺-форме

Таблица 2

Коэффициенты распределения урана на катионитах марки Purolite и СГ-1

Наименование сорбента	$K_d, \text{см}^3/\text{г}$			
	pH = 5,5	pH = 4,0	pH = 2,0	pH = 0,3
СГ-1	4950	450	0	0
S 957	15700	13600	8400	3700
D 5041	36900	36200	14900	1100
C 100	36900	41800	24200	76
C 104FL	16200	15800	220	58
C 104 Plus	300	170	2	0
C 106	1950	270	4	0
C 107	770	200	2	0
C 115	1220	210	1	0

В ходе проведения статических экспериментов установлена зависимость коэффициентов распределения урана на исследуемых образцах катионитов от кислотности раствора. Результаты экспериментов приведены в табл. 2.

Эффективная сорбция урана на катионитах СГ-1, С 104FL, С 104Plus, С 106, С 107, С 115 наблюдается при значениях pH растворов от 4,0 до 5,5, поскольку их функциональная группа остаётся частично или полностью

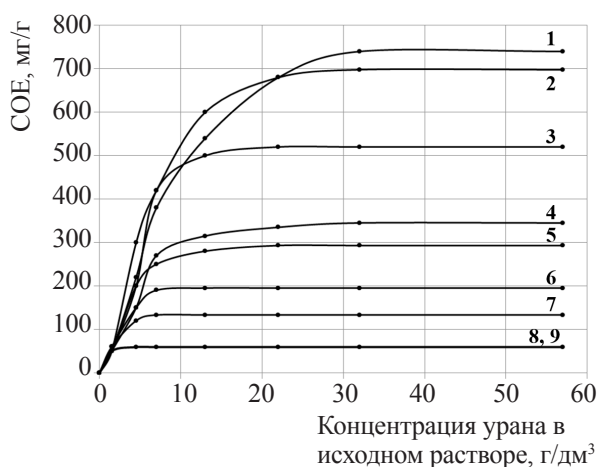
недиссоциированной при низких значениях pH в соответствии с особенностями типичных слабокислотных катионитов. Катионит S 957 относится к полифункциональным ионитам, поскольку одновременно содержит две активные группы и проявляет свойства как сильной, так и слабой кислот, поэтому данный катионит обладает высокой сорбционной способностью по отношению к урану во всей исследованной области pH. Катионит D 5041, относящийся к катионитам средней силы, проявляет высокую сорбционную способность по отношению к урану в слабокислой и нейтральной среде. При увеличении кислотности раствора эффективность сорбции снижается. Эффективная сорбция урана на сильнокислотном катионите C 100 наблюдается при значениях pH растворов от 2,0 до 5,5.

В отличие от сульфокислотных и фосфорнокислых катионитов, которые в целом мало-специфичны по отношению к большинству катионов, для карбоксильных ионитов характерно более четкое повышение избирательности при переходе от однозарядных к двухзарядным ионам [7]. Несмотря на то, что получены более низкие значения коэффициентов распределения урана на карбоксильных катионитах, они являются более селективными по отношению к уранил-иону.

Изотермы сорбции урана из имитационных растворов на исследуемых образцах катионитов в виде зависимостей COE от концентрации урана в исходном растворе представлены на рис. 2.

По изотермам сорбции определяли значения полной обменной ёмкости (ПОЕ) исследуемых образцов катионитов по урану, которым соответствуют значения COE, не изменяющиеся с ростом концентрации урана в равновесном растворе. Ёмкостные и кинетические характеристики исследованных образцов катионитов приведены табл. 3.

Следует отметить, что корреляция между паспортными значениями ПОЕ (табл. 1) и экспериментально полученными значениями ПОЕ исследованных образцов катионитов по урану (табл. 3) отсутствует, что, по-видимому, обусловлено разными условиями проведения экспериментов по установлению значений данных параметров.



1 – C 100; 2 – C 104FL; 3 – СГ-1; 4 – D 5041; 5 – S 957; 6 – C 115; 7 – C 106; 8 – C 107; 9 – C 104 Plus

Рис. 2. Зависимость COE катионитов марки Purolite и СГ-1 от концентрации урана в исходном растворе при значении pH, равном 5,5

Таблица 3

Ёмкостные и кинетические характеристики исследованных образцов катионитов марки Purolite и СГ-1

Наименование сорбента	ПОЕ по урану, мг/г	Q*, к.о./ч
СГ-1	520	3,2
S 957	293	1,6
D 5041	345	3,5
C 100	740	17,4
C 104FL	698	7,5
C 104Plus	57	н/о
C 106	133	5,6
C 107	59	н/о
C 115	195	5,8

Примечание: *Для растворов с концентрацией урана не более 15 г/дм³ и pH=5,0±0,5; н/о – не определяли.

Таким образом, наибольшей сорбционной ёмкостью по отношению к урану в азотно-кислых растворах со значением pH, равным 5,0±0,5, обладают катиониты СГ-1, C 104FL,

S 957, D 5041, C 100, C 106 и C 115. При этом наиболее низкими кинетическими характеристиками обладает катионит S 957.

Результаты экспериментов по выделению урана из технологических растворов в динамическом режиме

Таблица 4

Результаты экспериментов по выделению урана из технологических растворов в динамическом режиме

Наименование сорбента	ЕДП, г/дм ³	ПДОЕ, г/дм ³
СГ-1	34,4	152
S 957	3,5	н/о
D 5041	5,7	н/о
C100	< 0,3	н/о
C 104 FL	58,0	164
C104Plus	< 0,3	н/о
C106	30,5	191
C107	2,7	н/о
C115	30,0	215

Примечание. н/о – не определяли.

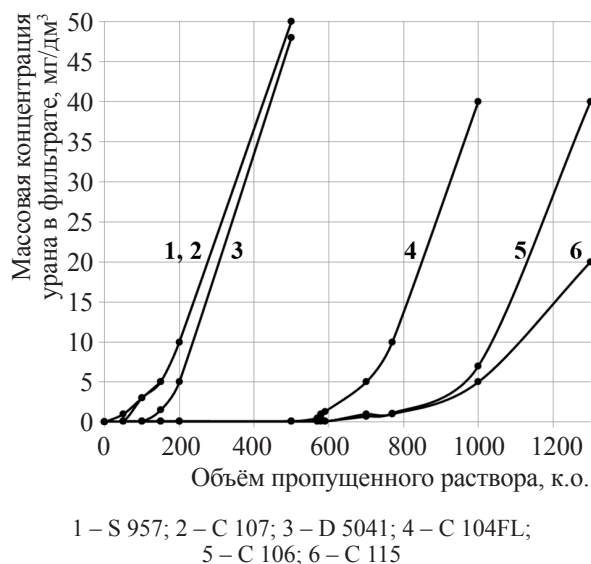


Рис. 3. Выходные кривые сорбции урана из технологических растворов на катионитах марки Purolite

ческом режиме приведены в табл. 4. Выходные кривые сорбции урана из азотнокислых технологических растворов с массовой концентрацией урана, не превышающей 1 г/дм³, и значением рН среды, равным $5,0 \pm 0,5$, на катионитах марки Purolite представлены на рис. 3.

При проведении динамических экспериментов по выделению урана из азотнокислых технологических растворов на катионитах марки Purolite было установлено, что извлечение урана на катионитах C 100 и C 104Plus практически не происходило. Также наблюдалась неэффективная сорбция урана на катионитах D 5041, S 957, C 107. Ввиду низких значений ЕДП для данных катионитов по урану ПДОЕ не определяли. Несмотря на достаточно высокие показатели сорбционной способности катионитов C 100, S 957 и D 5041 по отношению к урану в имитационных растворах, их обменная ёмкость значительно снижается при выделении урана из реальных технологических растворов, имеющих сложный солевой состав. Установлено, что присутствие в растворе таких макропримесей, как железо, алюминий и хром с концентрациями от 1 до 5 г/дм³, приводит к снижению коэффициента распределения урана на данных катионитах на 2–3 порядка. Данная тенденция наблюдается как в нейтральных, так и в слабокислых растворах [5, 8].

Таким образом, катиониты S 957, D 5041, C 100, C 104Plus, C 107 нецелесообразно использовать для выделения урана из растворов сложного солевого состава.

Процесс выделения урана из технологических растворов на катионитах C 104FL, C 106, C 115 характеризуется высокими значениями таких показателей сорбционного процесса, как ЕДП и ПДОЕ. Кроме того, отмечено, что по сорбционным характеристикам данные образцы катионитов не уступают ранее применяемому на производстве катиониту СГ-1.

Обобщённые данные по извлечению урана из фазы исследуемых образцов катионитов в динамическом режиме в сравнении с катионитом СГ-1 приведены в табл. 5.

Результаты исследований процесса десорбции показали, что для полного извлечения урана из фазы катионитов S 957 и D 5041 требуется пропустить не менее 20 к.о. десорбирующего раствора. Аналогичная ситуация

Таблица 5

Результаты десорбции урана из фазы исследуемых образцов катионитов

Наименование сорбента	Объём десорбата, к.о.	φ, %
СГ-1	5	99
С 104FL	7	100
S 957	20	100
D 5041	30	98
С 106	7	100
С 107	7	98
С 115	7	98

складывается при использовании в качестве десорбирующих растворов карбоната аммония и карбоната натрия. Карбоксильные катиониты С 104 FL, С 104 Plus, С 106, С 107, С 115 достаточно легко поддаются регенерации. Для полной десорбции урана через слой данных катионитов достаточно пропустить не более 10 к.о. раствора азотной кислоты с молярной концентрацией $2,0 \pm 0,5$ моль/дм³.

Таким образом, по результатам статических экспериментов с использованием имитационных растворов и динамических экспериментов с использованием реальных технологических растворов установлено, что катиониты марки Purolite – С 104FL, С 106 и С 115 – являются перспективными материалами для выделения урана из азотнокислых технологических растворов, имеющих сложный солевой состав, и могут рассматриваться в качестве аналогов ранее используемого на предприятиях ядерно-энергетического комплекса катионита СГ-1.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ионообменные материалы для процессов гидрометаллургии, очистки сточных вод и водоподготовки / Под ред. Ласкорина Б.Н. – 3-е изд. – М.: ВНИИХТ, 1983. – 206 с.
2. Некрасова Н.А., Кудрявцева С.П., Милютин В.В. и др. Исследование сорбции урана из азотнокислых растворов на различных ионообменных материалах // Радиохимия. – 2008. – Т. 50. – № 2. – С. 156–157.
3. Некрасова Н.А., Гелис В.М., Буданцева Н.А. и др. Сорбция Th, U и Am на фосфорсодержащих ионообменных материалах // Радиохимия. – 2010. – Т. 52. – № 1. – С. 63–66.
4. Ворошилов Ю.А. Логунов М.В., Воронова М.П. Исследование сорбционных свойств анионитов марок Purolite и Lewatit применительно к процессам переработки ядерного топлива и производства радиоактивных изотопов // Вопросы радиац. безопасности. – 2013. – № 2. – С. 71–83.
5. Лызлова Е.В., Глухова А.В., Рамазанов Л.М. Изучение возможности извлечения урана из азотнокислых регенерационных растворов с применением новых катионитов // Вопросы радиац. безопасности. – 2012. – № 2. – С. 24–30.
6. Лызлова Е.В., Глухова А.В., Кондруцкий Д.А. Извлечение плутония из азотнокислых регенерационных растворов с использованием винилпиридиниевых анионитов марки AXIONIT VPA-2 // Радиохимия. – 2019. – Т. 61. – № 2. – С. 122–126.
7. Кокотов А.Ю. Иониты и ионный обмен. – Л.: Химия, 1980. – 150 с.
8. Лызлова Е.В. Выделение и концентрирование актинидов из азотнокислых растворов с применением новых ионообменных материалов: Автореф. дисс. ... канд. техн. наук. – Озёрск, 2014. – 20 с.

УДК 544.03:0.8; 543.572.3

© 2022

РАЗРАБОТКА МЕТОДИКИ ИССЛЕДОВАНИЯ ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ПОРОШКООБРАЗНЫХ МАТЕРИАЛОВ МЕТОДОМ ДСК

*Н.П. Старовойтов, С.А. Лукин, С.В. Коренев, В.А. Казаков, В.А. Дудкин,
П.В. Козлов, П.А. Бобров
Россия, г. Озёрск, ФГУП "ПО "Маяк"*

Путём модификации известной ранее методики измерения теплопроводности твёрдых, композитных материалов методом дифференциально сканирующей калориметрии была предложена и опробована новая методика экспериментального исследования теплофизических характеристик порошкообразных материалов на примере U_3O_8 . Показано преимущество данной методики измерений при исследовании активных порошков. Для порошкообразных материалов различных веществ определены зависимости коэффициента теплопроводности от температуры. Доказана применимость данного метода при работе с реальными активными образцами порошкообразных материалов для изучения их теплофизических свойств и в дальнейшем для оценки параметров безопасного обращения и хранения. Совместная обработка результатов термографирования эталонных образцов и порошкообразных материалов на примере U_3O_8 с плотностью $6,326 \text{ г/см}^3$ позволила с погрешностью не более 1 % найти значения коэффициента теплопроводности последнего: $\lambda(T, K) = 0,197 (429,75); 0,210 (505,05); 0,225 (692,65) \text{ Вт/(м·К)}$ при температурах плавления образцов индия, цинка и олова соответственно.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: ПОРОШКООБРАЗНЫЕ МАТЕРИАЛЫ, ЗАКИСЬ-ОКИСЬ, БЕЗОПАСНОЕ ХРАНЕНИЕ, ТЕПЛОПРОВОДНОСТЬ, ПЛАВЛЕНИЕ МЕТАЛЛА, ТЕПЛОВЫЙ ПОТОК, ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНО СКАНИРУЮЩАЯ КАЛОРИМЕТРИЯ

В результате производства изделий из обеднённого урана на ФГУП "ПО "Маяк" образуется некоторое количество отходов в виде стружки. В настоящее время реализуется способ обращения со стружкой из обеднённого урана, предусматривающий частичное вовлечение металла в производство и временное хранение невостробованной части материала. Однако в процессе хранения происходит окисление поверхностного слоя стружки, при этом образуется некоторое количество продуктов коррозии урана. В связи с этим были проведены опытные операции по оптимизации технологии обращения с продуктами коррозии стружки металлического урана с получением закиси-оксида урана как более устойчивой формы хранения урана. Проведены термоаналитические исследования указанного процесса методом термогравиметрии.

В настоящей работе для решения вопросов по обеспечению взрывопожаробезопасности [1] была предложена и опробована новая методика экспериментального определения теплопроводности материалов в форме порошка на примере закиси-оксида урана методом дифференциально сканирующей калориметрии (далее – ДСК) на приборе синхронного термического анализа. До недавнего времени данным методом теплопроводность порошкообразных материалов не определялась. Теплопроводность, наряду с теплоёмкостью и температуропроводностью, широко используется для численного моделирования условий безопасного хранения получаемых порошкообразных материалов. В настоящее время проведена экспериментальная и расчётная работа с обоснованием возможности применения указанной методики.

МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Практическая процедура для изучения теплопроводности была описана в 1985 году Хаквортом и Ван-Райеном [2].

Хакворт и Ван-Райен предложили метод определения коэффициента теплопроводности для твёрдых композиционных материалов. В этом методе кусочек чистого материала (например, индия или галлия) помещается на верхнюю круговую поверхность твёрдого образца в форме прямого цилиндра или диска, а затем образец (без тигля) помещается непосредственно в измерительную ячейку ДСК анализатора. В ходе нагревания достигается точка плавления металла, и его температура остаётся постоянной, пока весь металл не расплавится. Таким образом, температура верхней поверхности диска в этот момент постоянна и известна. Температура нижней поверхности диска и подводимый к ней тепловой поток измеряются ДСК анализатором. Из известной разности температур между двумя поверхностями диска и потока тепла можно затем вычислить теплопроводность образца.

Помимо чистого ДСК анализатора, сегодня доступны и другие приборы для измерения теплопроводности материалов. Главным преимуществом ДСК измерений является возможность измерить ещё и удельную теплоёмкость материала на том же приборе. Это по-

зволяет определить температуропроводность исследуемого материала. Описанный метод сравнительно недавно стал использоваться для определения свойств композитных [3] и новых материалов [4].

Метод, предложенный Хаквортом и Ван-Райеном, был изучен специалистами ФГУП "ПО "Маяк", а затем модернизирован для изучения теплофизических свойств активных порошкообразных материалов. Измерения теплопроводности данным модифицированным методом были выполнены на приборах синхронного термического анализа SDT Q600 (рис. 1) и STA F3 Jupiter (рис. 2). Прибор STA F3 Jupiter использовался в комплектации для работы с активными пробами, когда измерительная ячейка прибора располагается в перчаточном боксе отдельно от основного корпуса управления.

Новая методика проведения экспериментов по определению теплопроводности порошкообразных материалов методом ДСК заключалась в следующем:

1. В качестве эталонного образца сравнения использовался пустой тигель объёмом 90 мкл (рис. 3а).

2. Навеску (около 80 мг) чистого металла (индий, олово, цинк) из выбранного диапазона значений температур плавления помещали в алюминиевый тигель объёмом 20 мкл без крышки (рис. 3в) с таким расчётом, чтобы



Рис. 1. Совмещённый термоанализатор SDT Q600 для методов ТГА/ДСК

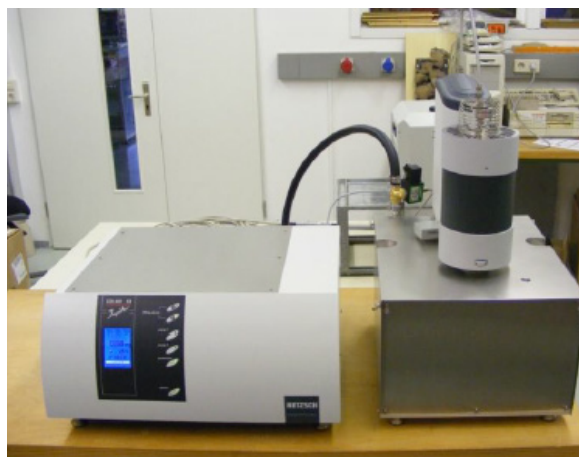


Рис. 2. Совмещённый термоанализатор STA F3 Jupiter для методов ТГА/ДСК



Рис. 3. Оксидированные алюминиевые тигли и образцы чистого металла в тиглях.
а – керамический тигель, Al_2O_3 объём 90 мкл; б – керамический тигель, Al_2O_3 объём 40 мкл;
в – образцы чистого металла в тиглях объёмом 20 мкл без крышки



Рис. 4. Измерительная ячейка прибора для эталона и образца

при плавлении металл полностью покрыл дно тигля. Подготовленный таким образом тигель можно использовать несколько раз. Кроме того, после проведения двух экспериментов проверяли, чтобы температура плавления и энтальпия плавления металла в тигле не изменились, т.к. любые отклонения от исходных значений означают либо образование сплава (возможно появление второго пика), либо окисление.

3. Образец порошкообразного материала засыпался в керамический тигель объёмом 40 мкл (рис. 3б).

4. Затем тигель объёмом 20 мкл без крышки с выбранной навеской из чистого металла размещали на верхней поверхности порошкообразного исследуемого материала, который был засыпан в тигель объёмом 40 мкл. Вся конструкция устанавливалась в

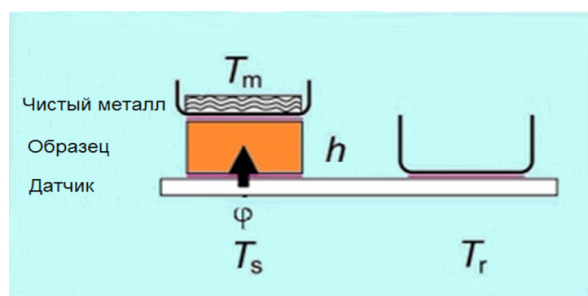
измерительную ячейку прибора (рис. 4 и 5).

Схема эксперимента для определения коэффициента теплопроводности материала методом ДСК до и после его модификации представлена на рис. 5.

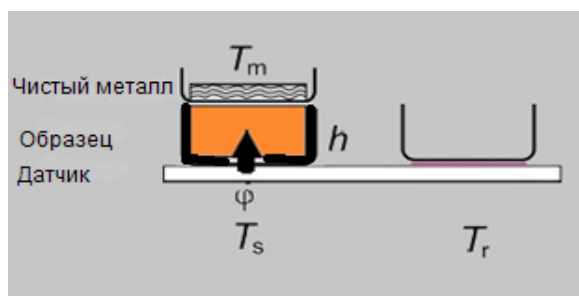
5. Затем снимали кривые плавления металла для пустого тигля и тигля с образцом (рис. 6). Зазоры между тиглем и образцом, между тиглем и датчиком в ячейке минимальны.

Для снижения температурного градиента в образце измерения велись при малой скорости нагрева ($1^\circ\text{C}/\text{мин}$). Использовалась следующая тепловая программа:

– нагрев от комнатной температуры до температуры, близкой к температуре плавления металла (140°C – индий, 220°C – олово, 400°C – цинк);



а – образец расположен без тигля



б – образец засыпан в тигель

Рис. 5. Схема размещения исследуемого твёрдого образца без тигля до модификации (а) и после (б) для сыпучего материала в керамическом тигле в ячейке ДСК анализатора.

h – высота цилиндрического образца или засыпанного материала; ϕ – измеряемый тепловой поток от датчика к образцу без тигля и к образцу в тигле; T_m – температура расплавленного чистого металла; T_s – температура датчика под образцом; T_r – температура образца сравнения

– нагрев до температуры, когда образец металла полностью расплавился ($170\text{ }^{\circ}\text{C}$ – индий, $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ – олово, $440\text{ }^{\circ}\text{C}$ – цинк) со скоростью $1\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{мин}$, охлаждение до комнатной температуры.

Для того чтобы можно было оценивать статистическую погрешность полученных результатов, одна температурная программа калибровки включала три цикла плавления (нагревание) и два цикла кристаллизации образца (охлаждение), т.е. программа разбивалась на пять сегментов для индия и олова и на три сегмента – для цинка. При первичном плавлении навески образца металла температура плавления всегда получается завышенной по сравнению с температурами плавления второго и третьего пиков. Это можно объяснить тем, что изначально образец металла представлял кусок неидеальной формы, который может не полностью соприкасаться с дном тигля и покрывать его поверхность. Это приводит к неоднородному нагреванию материала и запаздыванию его температуры плавления на фиксируемом сигнале. При повторном нагревании температуры плавления согласуются между собой и близки к температуре плавления эталона.

Образец с навеской чистого металла (индий, олово, цинк) всегда нагревался выше его температуры плавления в среднем не более $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ для полного плавления.

Кривая плавления для пустого тигля без

образца с навеской чистого металла представлена на рис. 6.

6. В ходе нагревания тигля с навеской чистого металла достигалась точка плавления, и

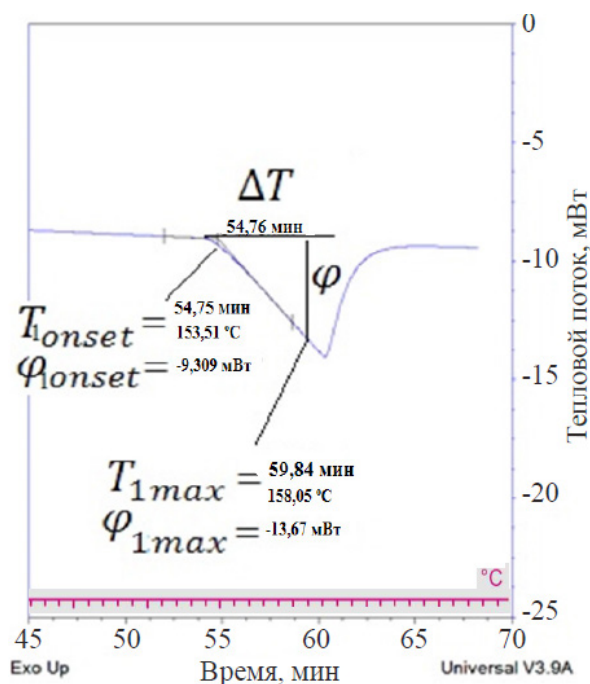


Рис. 6. Кривая плавления для пустого тигля без образца со стандартным металлом (определение углового коэффициента S)

температура оставалась постоянной, пока вся навеска металла не расплавится. Таким образом, температура верхней поверхности порошкообразного материала, засыпанного в тигель, была постоянна и известна. Температура нижней поверхности исследуемого образца и подводимый к ней поток измерялись термоанализатором. По полученной зависимости вычисляли угловой коэффициент наклона S линейного участка пика плавления. Проводя два измерения (с порошкообразным материалом образца и без него), рассчитывали величину теплопроводности с учётом тепловых сопротивлений.

ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

В стационарных условиях поток тепла Φ , Вт, через образец с тепловым сопротивлением пропорционален разности температур между нижней и верхней границами образца и вычисляется по формуле

$$\Phi = 1/R_s \cdot \Delta T, \quad (1)$$

где R_s – тепловое сопротивление образца, °С/Вт;

ΔT – разница температур на границе образца, °С.

Тепловое сопротивление образца определяется коэффициентом теплопроводности материала и геометрией образца и вычисляется по формуле $R_s = h / (\lambda \cdot A)$, (2)

где λ – коэффициент теплопроводности образца, Вт/(м·°С);

A – площадь поперечного сечения образца в тигле, м²;

h – высота засыпанного исследуемого порошкообразного материала образца в тигле, м.

Для образца с диаметром D площадь поперечного сечения образца в тигле вычисляется по формуле $A = (\pi \cdot D^2) / 4$, (3)

где D – внутренний диаметр тигля с порошкообразным материалом образца, м.

Величина потока тепла от датчика анализатора к металлу в алюминиевом тигле на верхней поверхности образца зависит не только от теплового сопротивления самого образца, но и от теплового сопротивления границ датчик-образец (R_1) и образец-металл (R_2). Поэтому формула (1) должна быть переписана в следующем виде

$$\Phi = (T_s - T_m) / (R_1 + R_s + R_2), \quad (4)$$

где T_s – температура датчика под образцом, °С;

T_m – температура расплавленного чистого металла (эталона), °С;

R_1 – тепловое сопротивление границ датчик-тигель-образец, °С/Вт;

R_2 – тепловое сопротивление границ образец-тигель-металл, °С/Вт.

В экспериментах для воспроизводимости величин R_1 и R_2 зазоры на границах устанавливали минимальными. В этих условиях можно считать, что при использовании образцов с одинаковым поперечным сечением величины R_1 и R_2 не зависят от образца, и можно ввести параметр R_t

$$R_t = R_1 + R_2. \quad (5)$$

Параметр R_s и искомый коэффициент теплопроводности образца λ может быть определён при условии, что известны входящие в уравнения (4) и (5) величины Φ , R_t , T_s , T_m . Поскольку используется чистый металл, то величина T_m во время плавления известна. Величины Φ и T_s определяются ДСК анализатором в ходе измерений, а величина R_t может быть найдена из серии измерений. Если $R_t \ll R_s$, то им вообще можно пренебречь. В этом случае для определения коэффициента теплопроводности λ достаточно снять всего одну кривую плавления.

Подставив уравнение (2) в выражение (1), получим формулу (6)

$$\lambda = (\Phi / \Delta T) \cdot (h / A). \quad (6)$$

Формула (6) справедлива только в ходе плавления чистого металла. В этом случае ΔT в формуле (6) численно равна разности температур T_s в любой момент времени t и точки плавления металла (т.е. температуры начала плавления T_{onset}).

$$\Phi / \Delta T = (\Phi_t - \Phi_{onset}) / (T_s - T_{onset}) = S, \quad (7)$$

где Φ_t – тепловой поток в момент времени t , Вт;

Φ_{onset} – тепловой поток в точке начала плавления металла, Вт;

T_{onset} – температура начала плавления металла, °С;

S – угловой коэффициент, тангенс угла наклона кривой ДСК, Вт/°С.

Соответствующий тепловой поток Φ в

формуле (7) выражается разностью теплового потока в момент времени t , Φ_t и потока в начале плавления Φ_{onset} (рис. 6).

Из уравнений (4)–(7) получаем уравнение

$$1/S = R_t + h / (A \cdot \lambda), \quad (8)$$

Проведя два измерения (одно с образцом в тигле и металлом, а второе с пустым тиглем и металлом), можно вычислить значение коэффициента теплопроводности λ с учётом тепловых сопротивлений R ,

$$\lambda = \frac{\Delta h}{A \cdot \left(\frac{1}{S_2} - \frac{1}{S_1} \right) \cdot R_t} = \frac{\Delta h}{A \cdot \left(\frac{T_{2max} - T_{2onset}}{\varphi_2} - \frac{T_{1max} - T_{1onset}}{\varphi_1} \right) \cdot R_t}, \quad (9)$$

где Δh – высота образца в тигле, м;

S_1 – угловой коэффициент наклона кривой ДСК для пустого тигля и металла, отн.ед.;

S_2 – гловой коэффициент наклона кривой ДСК для тигля, заполненного образцом и металлом в алюминиевом тигле, отн.ед.;

R_t – тепловое сопротивление находится из серии измерений со стандартными образцами, °C/Вт, вычисляется по формуле

$$R_t = (1 / S_2 - 1 / S_1) + \Delta h / (A \cdot \lambda_{табл}), \quad (10)$$

$\lambda_{табл}$ – табличное значение коэффициента теплопроводности стандартного образца, Вт/(м·°C);

T_{2max} – температура в любой момент времени t_2 , взятая на кривой плавления металла в алюминиевом тигле при измерении образца в тигле, °C;

T_{2onset} – температура начала плавления металла в алюминиевом тигле при измерении образца в тигле, °C;

T_{1max} – температура в любой момент времени t_1 , взятая на кривой плавления металла в алюминиевом тигле при измерении пустого тигля без образца, °C;

T_{1onset} – температура начала плавления металла в алюминиевом тигле при измерении пустого тигля без образца, °C;

$\Phi_{1(2)}$ – тепловой поток в момент времени t , взятый на кривой плавления металла

в алюминиевом тигле при измерении пустого тигля без образца (с образцом), Вт, вычисляется по формуле

$$\Phi_{1(2)} = \Phi_{1(2)onset} - \Phi_{1(2)max}. \quad (11)$$

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Известно, что для порошковых материалов коэффициент теплопроводности изменяется от 0,1 до 0,6 Вт/(м·°C) [5]. Для проверки возможности использования новой методики по расчёту коэффициента теплопроводности порошкообразных материалов были выбраны материалы (эталон), теплопроводность которых находится в данных пределах. Были выбраны следующие материалы: тефлон (цилиндрический твёрдый образец), древесная зола (порошок) и оксид магния (порошок).

На начальных этапах адаптируемой методики со стандартными образцами (тефлон и порошковые материалы) с известной теплопроводностью $\lambda_{табл}$ из серии измерений термографирования (измерение сигнала теплового потока) находят параметры коэффициентов теплового сопротивления R_t (для конкретного прибора при определённой температуре плавления применяемого чистого металла), который затем используется для расчёта получаемых экспериментальных значений теплопроводности.

Расчётные значения теплового сопротивления R_t , полученные по формуле (10) из серии измерений со стандартным образцом (древесная зола) для температурного диапазона от 156,6 до 419,5 °C, приведены в табл. 1. Значения теплового сопротивления R_t , полученные для тефлона, древесной золы и оксида магния для выбранных температур плавления чистого металла, совпадают.

Измерения коэффициента теплопроводности при температуре 419,5 °C для тефлона не проводили, так как при достижении данной температуры тефлон разлагается.

Затем приступили к экспериментам непосредственно с порошкообразными материалами.

Образец порошкообразного материала U_3O_8 засыпали в тигель из Al_2O_3 объёмом 40 мкл (рис. 4(б)), предварительно уплотнив специально изготовленным грузиком массой 100 г (рис. 7).

Таблица 1

Расчётные значения теплового сопротивления для разных температур
на примере стандартного материала древесной золы

ρ , г/см ³	t , °C	$\lambda_{\text{табл}}$, Вт/м·К, [7]	$\Phi_{1\text{onset}}$, мВт	$\Phi_{1\text{max}}$, мВт	Φ_1 , мВт	$\Phi_{2\text{onset}}$, мВт	$\Phi_{2\text{max}}$, мВт	Φ_2 , мВт	$T_{1\text{onset}}$, °C	$T_{1\text{max}}$, °C	$T_{2\text{onset}}$, °C	$T_{2\text{max}}$, °C	R_f , °C/Вт
4,509	156,6	0,15	-5,473	-13,47	7,997	-9,222	-12,18	2,958	155,46	157,03	153,37	156,59	3,062
4,509	231,9		-8,249	-19,92	11,671	-11,64	-18,28	6,64	229,79	233,07	228,10	234,12	2,796
4,509	419,5		-18,16	-30,78	12,62	-16,36	-19,56	3,2	415,40	420,24	416,65	418,61	2,399

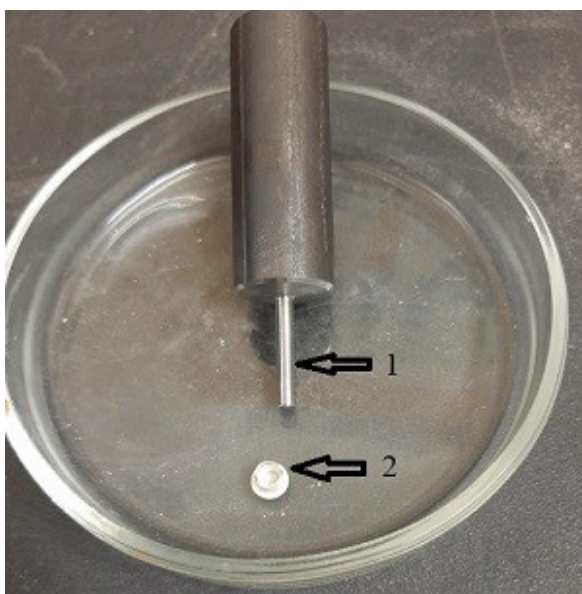


Рис. 7. Уплотнитель и тигель.
1 – уплотнитель массой 100 г, 2 – тигель
объёмом 40 мкл

Затем по методике на образец порошкообразного материала U_3O_8 , имеющий форму цилиндра, сверху помещали алюминиевый тигель со стандартным образцом чистого металла (индий, олово, цинк) (рис. 3(в)).

Статистическую обработку результатов экспериментов проводили по формулам

$$\mu(x) = N^{-1} \cdot \sum_{i=1}^N x_i, \quad (12)$$

$$\delta = ((N \cdot (N - 1))^{-1} \cdot \sum_{i=1}^N (x_i - \mu)^2)^{1/2}, \quad (13)$$

где δ – средняя квадратическая погрешность.

μ – среднее значение;

x_i – результат единичного измерения;

N – число измерений.

Как было сказано в методической части, для проверки адекватности предложенного способа определения теплопроводности проведены пробные эксперименты для образцов из тефлона, древесной золы и оксида магния. При этом рассмотрены зависимости коэффициента теплопроводности от плотности "неактивных" образцов, близких по гранулометрическому составу к закиси-окиси урана.

Полученные экспериментальные данные приведены на рис. 8 и в табл. 2.

Анализируя представленные на рис. 8 и в табл. 2 данные, можно сделать вывод, что полученные экспериментальные значения теплопроводности хорошо согласуются с литературными табличными данными для выбранных материалов. Погрешность данного метода находится в диапазоне от $\pm 1\%$ до $\pm 10\%$ [2].

Установлено, что с ростом плотности порошка оксида магния (рис. 8, табл. 2) от 1,395 до 1,980 г/см³ значение коэффициента теплопроводности при температуре 231,9 °C растёт от 0,121 до 0,242 Вт/(м·°C).

Среднеквадратическая погрешность определения теплопроводности матриц для образцов порошка оксида магния с плотностью, близкой к 1,454 г/см³, в предложенном методе ДСК на приборе STA F3 Jupiter составила 0,001.

Результаты экспериментов с порошкообразными материалами на основе закиси-окиси урана (U_3O_8), проведённые на приборе STA F3 Jupiter, представлены на рис. 9–12 и в табл. 3.

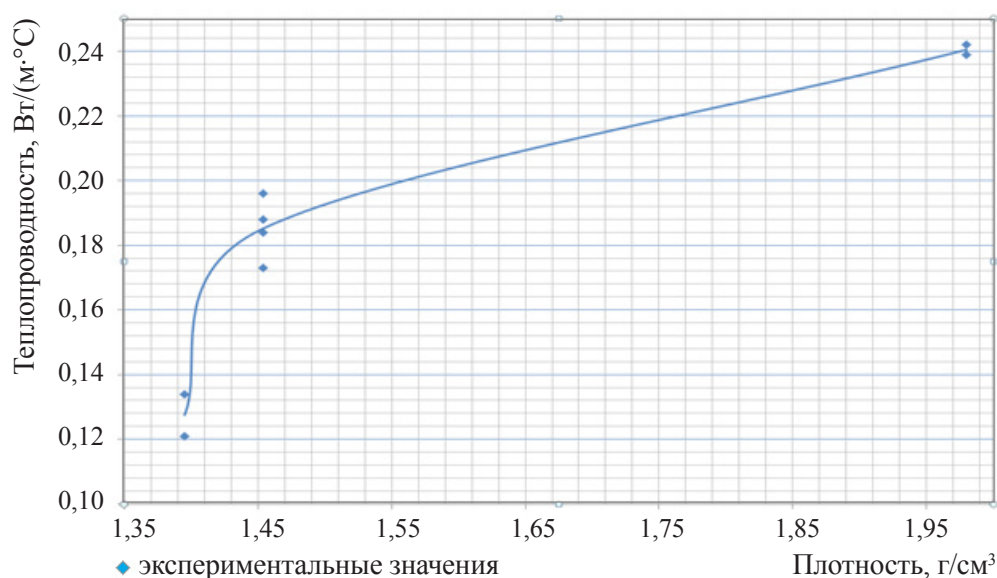


Рис. 8. Экспериментальные значения коэффициента теплопроводности для магниевой матрицы MgO

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Предложена методика определения теплофизических свойств образцов в форме порошка методом ДСК.

2. Полученные экспериментальные значения коэффициента теплопроводности неактивных и активных порошкообразных материалов хорошо согласуются с данными, опубликованными в справочной литературе [5]. Погрешность данного метода не превышает $\pm 10\%$ [2].

3. На примере матрицы из оксида магния показано, что с увеличением плотности от 1,40 до 1,98 г/см³ теплопроводность матриц в виде порошка растёт от 0,121 до 0,242 Вт/(м·°С) при постоянной температуре.

4. Определена зависимость теплопроводности порошковой матрицы закиси-оксида урана (U_3O_8) от температуры (рис. 12 и табл. 3), которая необходима в дальнейшем для численных расчётов.

5. Показано, что главными преимуществами ДСК-измерений являются небольшие размеры образцов, что является важным критерием для работы с активными материалами. Доказана применимость данного метода при работе с реальными активными образцами по-

рошкообразных материалов для изучения их теплофизических свойств и в дальнейшем для оценки параметров безопасного обращения и хранения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Старовойтов Н.П., Казаков В.А., Дудкин В.А. и др. Результаты опытных операций по временному отключению системы охлаждения в ёмкостях-хранилищах радиоактивных суспензий // Траектория исследований – человек, природа, технологии. – 2022. – №1(1). – С. 16–25. – DOI 10.56564/27825264_2022_1_16. – EDN MYQEPP.
2. Hakvoort G., Van Reijen L.L. Measurement of the conductivity of solid substances by DSC // *Thermochimica Acta*. – 1985. – No. 93. – P. 317–320.
3. Price D.M., Jarratt M. Thermal conductivity of PTFE and PTFE composites // *Thermochimica Acta*. – 2002. – No. 392–393. – P. 231–236.
4. Camirand C.P. Measurement of thermal conductivity by differential scanning calorimetry // *Thermochimica Acta*. – 2004. – No. 417. – P. 1–4.
5. Теплофизические характеристики изоляционных материалов / В.А. Шевельков. – М., Госэнергоиздат, 1958. – 96 с.

Таблица 2

Результаты измерений теплопроводности на пробных образцах тефлона, древесной золы и оксида магния

Материал, стандарт	Размер гранул, мкм	Темпе- ратура, °C	Плот- ность, г/см ³	Коэффициент			Теплопроводность (табличные значения) $\lambda_{табл}$, Вт/(м·°C)	
				Теплового со- противления, R_t , °C/Вт	Теплопроводности, λ , Вт/(м·°C)			
					Эксперимент	Среднее		
Тефлон	—	20	2,2	—	—	—	0,239 [7]	
		156,6 ¹⁾	2,2	3,062	0,239	0,239		
		231,9 ²⁾	2,2	2,796	0,282	0,282		
		260	2,2	—	—	—	0,290 [7]	
Древесная зола	2,83–21,6	156,6 ¹⁾	4,509	3,062	0,119	0,119±0,001	0,15 [7]	
		231,9 ²⁾	4,509	2,796	0,186	0,186±0,001		
		419,5 ³⁾	4,509	2,399	0,593	0,593±0,001		
Оксид магния	6,13–22,3	90	0,475	—	—	—	0,079 [7]	
		156,6 ¹⁾	1,13	3,062	0,059	0,065±0,006		
			1,687	3,062	0,0715			
		231,9 ²⁾	1,395	2,796	0,121	0,128±0,007		
			1,395	2,796	0,134			
			1,454	2,796	0,196			0,185±0,005
			1,454	2,796	0,173			
			1,454	2,796	0,184			
			1,454	2,796	0,188			
			1,98	2,796	0,239	0,024±0,002		
			1,98	2,796	0,242			
		419 ³⁾	—	2,399	—			

Примечание: "—" данные отсутствуют или измерение не проводили; ¹⁾ температура плавления индия; ²⁾ температура плавления олова; ³⁾ температура плавления цинка.

Таблица 3

Результаты измерений теплопроводности для порошковой матрицы из U_3O_8 для насыпной плотности 6,326 г/см³

Материал образца	Температура, °C	Плотность, г/см ³	Коэффициент			Погрешность	
			Теплового сопротивления, R_t , °C/Вт	Теплопроводность, λ , Вт/(м·°C)		Средняя квадратическая	Относительная, %
				Эксперимент	Средняя		
Закись окись урана	156,6	6,326	3,062	0,1989	0,197	0,001	0,3
				0,1976			
				0,1964			
				0,1969			
	231,9	6,326	2,796	0,2102	0,2103	0,0001	0,1
				0,2104			
	419,5	6,326	2,399	0,2251	0,2251		

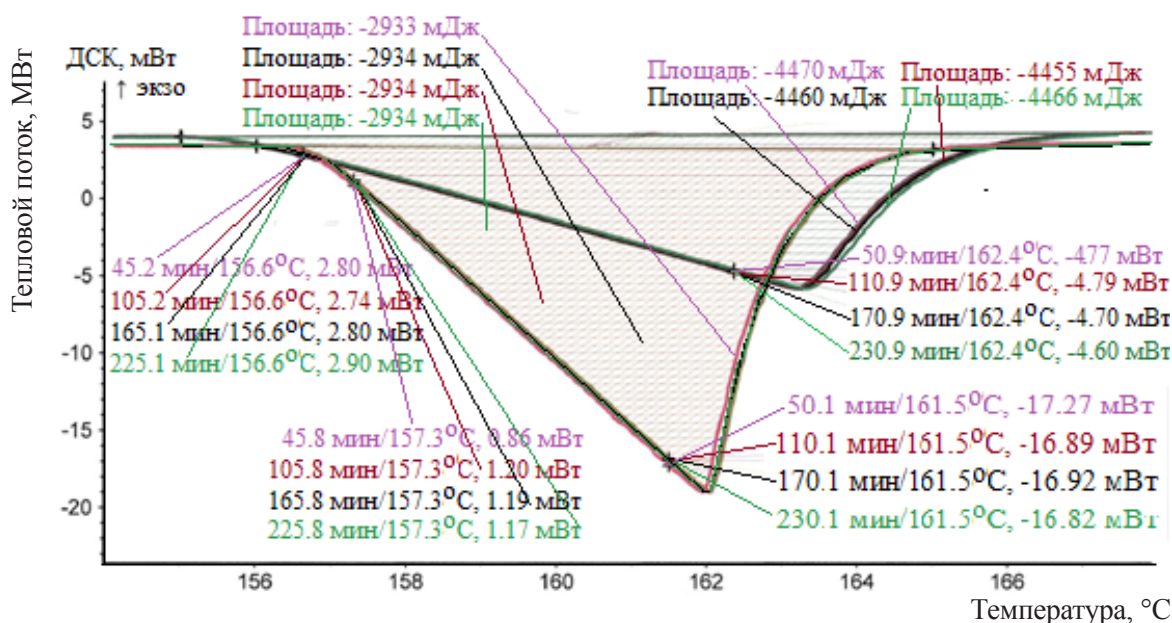


Рис. 9. Совмещённые кривые плавления или зависимость теплового потока ДСК от температуры и определение углового коэффициента для пустого тигля без образца (малые пики) со стандартным металлом (индий) и с образцом (U_3O_8)

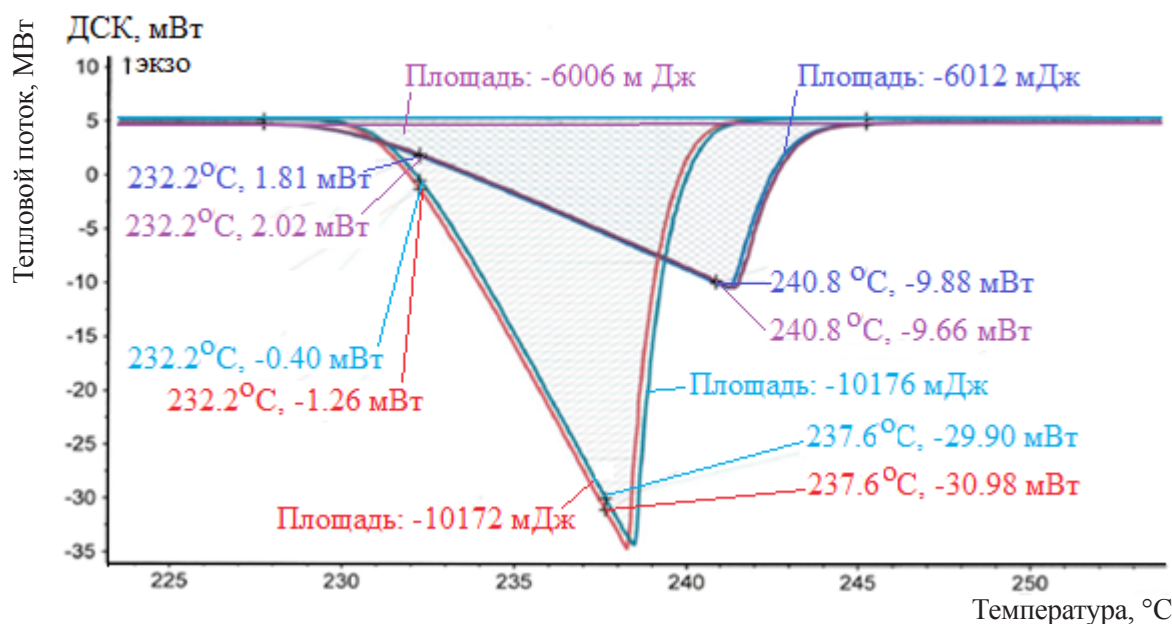


Рис. 10. Совмещённые кривые плавления или зависимость теплового потока ДСК от температуры и определение углового коэффициента для пустого тигля без образца (малые пики) со стандартным металлом (олово) и с образцом (U_3O_8)

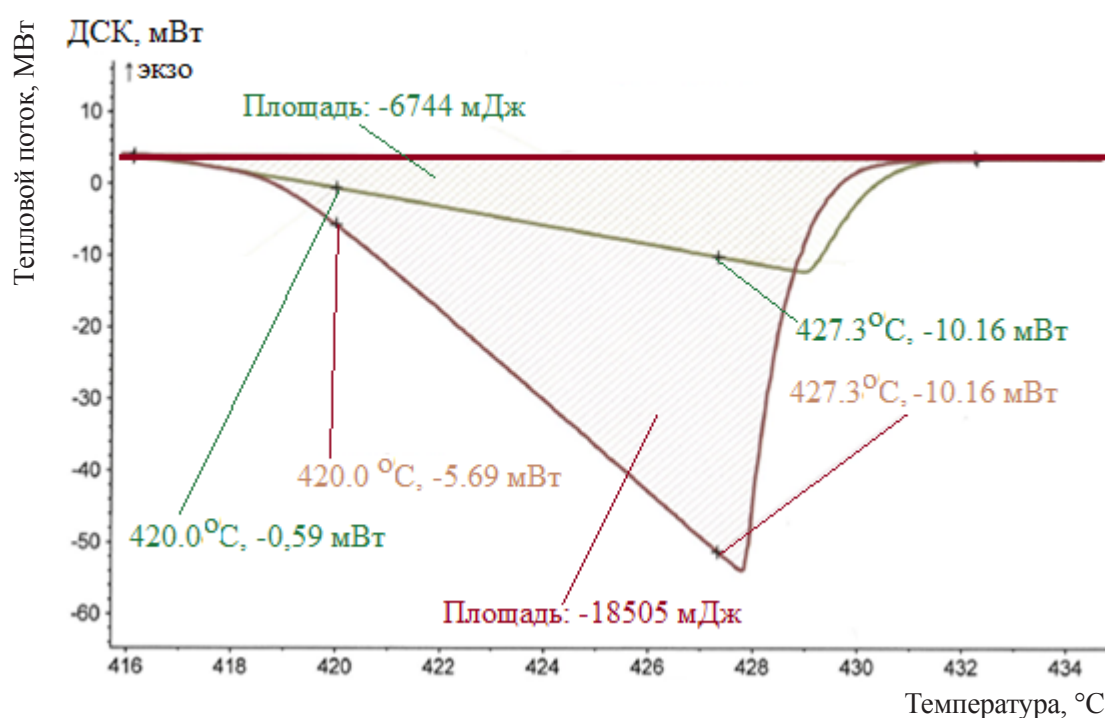


Рис. 11. Совмещённые кривые плавления или зависимость теплового потока ДСК от температуры и определение углового коэффициента для пустого тигля без образца (малые пики) со стандартным металлом (цинк) и с образцом (U_3O_8)

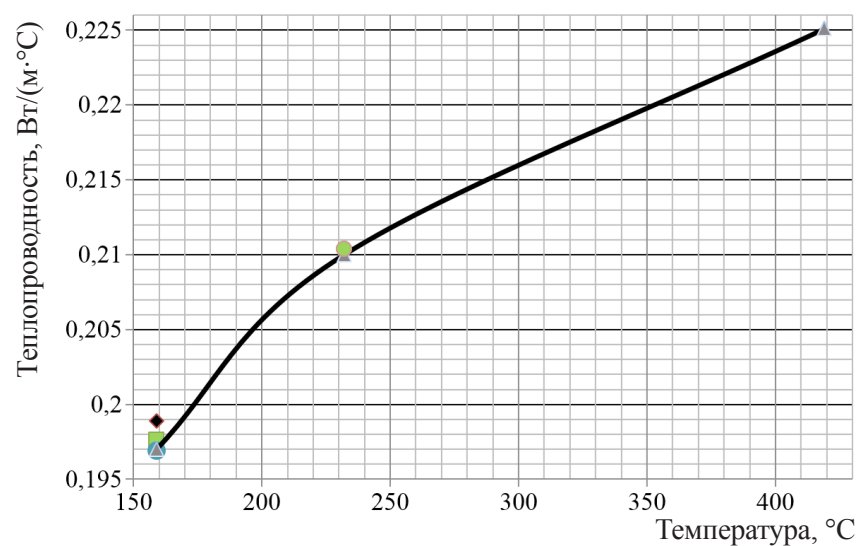


Рис. 12. Экспериментальная зависимость теплопроводности для порошковой матрицы из U_3O_8 для насыпной плотности $6,326 \text{ г/см}^3$ от температуры (квадратики, треугольники, кружки, ромбики – экспериментальные значения)

УДК 57.085.23

© 2022

**ИССЛЕДОВАНИЕ ДЛИНЫ ТЕЛОМЕРНЫХ РАЙОНОВ
ХРОМОСОМ В Т-ЛИМФОЦИТАХ ОБЛУЧЁННЫХ ЛИЦ****Я.В. Кривошапова, А.В. Возилова****Россия, г. Челябинск, ФГБУН УНПЦ РМ ФМБА России**

Известно, что длина теломерных районов хромосом в клетках человека становится меньше с возрастом. На ускорение этого процесса могут воздействовать разные факторы и, возможно, ионизирующее излучение. Цель работы состояла в исследовании влияния хронического облучения человека, пола и возраста на показатель длины теломерных районов хромосом. Объектом исследования были ФГА стимулированные Т-клетки периферической крови жителей прибрежных сёл р. Течи, подвергшихся хроническому комбинированному облучению. Оценили длину теломерных районов 1, 2, 3, 13, 14, 15, 16, 21 и 22 пар хромосом с применением метода флуоресцентного окрашивания (Q-FISH) теломер в комбинации с контрокрашиванием DAPI. В результате проведённого исследования отметили, что длина теломер в одной клетке широко варьируется, а размер теломерного района не коррелирует с длиной хромосомы или хромосомного плеча. У мужчин показатель длины теломер имеет достоверно высокие значения по сравнению с женщинами. С возрастом длина теломерных районов у обследованных достоверно снижается. В группе облучённых людей длина теломерных районов в акроцентрических хромосомах была достоверно выше в плечах 14p и 22p по отношению к группе сравнения.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: КОГОРТА РЕКИ ТЕЧИ, КОГОРТА IN UTERO ОБЛУЧЁННЫХ ЛИЦ, ТЕЛОМЕРНЫЕ РАЙОНЫ ХРОМОСОМ, ХРОНИЧЕСКОЕ РАДИАЦИОННОЕ ВОЗДЕЙСТВИЕ, ФЛУОРЕСЦЕНТНАЯ *IN SITU* ГИБРИДИЗАЦИЯ, FISH

Теломеры – структуры ДНК, расположенные на концевых участках хромосом и состоящие из tandemных повторов последовательности TTAGGG (у эукариот) и ассоциированных с ними белков. Известно, что при каждом делении клетки теломерные участки становятся короче, например, на 31–66 п.н. в год в лимфоцитах [1]. Учёные L. Hayflick и P. Moorhead первыми ввели термин "клеточное старение" на основе лимита на количество делений клеток в культуре. Позднее А.М. Оловников предложил гипотезу, согласно которой счётчиками клеточных делений могли быть концевые участки хромосом – теломеры, которые вследствие концевой недорепликации укорачивались в процессе деления. Именно этот процесс, по мнению учёного, и был причиной клеточной гибели [2, 3]. В некоторых исследованиях было показано, что длина теломерных районов отличается не только на разных хромосомах, но и в пределах одной хромосомы. В 1996 г. независимо друг от

друга две научные группы впервые показали гетерогенность длины теломер на разных плечах отдельных хромосом [4, 5].

Помимо естественного старения, есть много факторов, которые влияют на длину теломерных участков в нормальных клетках человека. Этот показатель у здоровых людей зависит как от генетических факторов, так и от факторов окружающей среды. Выявлены наследственные (прогерия, атаксия–телеангиэктазия, врождённый дискератоз и др.) и сердечно-сосудистые заболевания, остеопороз, болезнь Альцгеймера, сахарный диабет и некоторые другие болезни, связанные с возрастом, при которых у больного снижен показатель средней длины теломер. Причинами могут быть мутации генов теломеразы, белков Шелтерин–комплекса или систем репарации ДНК и многие другие [6, 7].

Повышенный уровень психологического стресса также способствует укорочению теломер [8]. Например, показатели длины теломер у

женщин, имеющих тяжело больных детей и из-за этого живущих в постоянном стрессе, соответствовали величинам, выявленным у женщин на 10 лет старше. Представители профессий, связанных с вредностью, также имели отличия в длине теломерных областей по сравнению с людьми того же пола и возраста, не контактировавших с вредными факторами [9]. При исследовании влияния пола человека на длину теломерных повторов в ряде работ отмечались повышенные показатели у женщин [1, 10, 11].

Ионизирующее излучение является одним из факторов, который постоянно присутствует в жизни современного человека: воздействие естественной фоновой радиации, передвижения на самолётах, медицинские диагностические процедуры и т. д. [9, 12]. В условиях воздействия радиации *in vivo* и *in vitro* на клетки мыши и человека с дефицитом теломеразы было показано, что длина теломер обратно коррелировала с радиочувствительностью организма. Нормальные фибробласты человека с короткими теломерами были более чувствительны к ионизирующей радиации, чем более молодые клетки с длинными теломерами. На основании этих данных было высказано предположение, что радиочувствительность коррелирует с потерей теломер, а не с их средней длиной [13]. Расчёт относительной длины теломер у пожилых рабочих-ядерщиков ПО "Маяк", подвергавшихся внутреннему α - и внешнему γ -облучению, показал, что этот показатель не отличался от необлучённого контроля [14].

Таким образом, анализ литературных данных позволяет сделать вывод, что теломерные районы хромосом человека укорачиваются с возрастом, в ряде патологических состояний организма, а также при воздействии ионизирующей радиации [15, 16].

В УНПЦ РМ ФМБА России более 60-ти лет обследуются лица, которые подверглись хроническому облучению в результате сброса жидких радиоактивных отходов ПО "Маяк" в р. Течу на Южном Урале. Облучение было внутренним за счёт поступления и накопления в организме радионуклидов $^{89,90}\text{Sr}$, внешним – за счёт γ -облучения. Критическим органом при воздействии в широком диапазоне доз является красный костный мозг (ККМ). Загрязнение радионуклидами речной системы началось с

1948 г., дозы облучения на ККМ в основном были сформированы до 1960 г. [17].

Цель настоящего исследования состояла в изучении влияния хронического облучения, пола и возраста на показатель длины теломерных районов хромосом в Т-клетках иммунной системы жителей прибрежных населённых пунктов р. Течи.

Задачи исследования:

1. Оценить корреляцию между длиной теломерного участка и размером плеча хромосомы.

2. Оценить влияние нерадиационных факторов – пола и возраста – на показатель длины теломер.

3. Изучить влияние хронического облучения на показатель длины теломер.

Объектом настоящего исследования были Т-лимфоциты периферической крови облучённых на Южном Урале людей. Поскольку клетки-предшественники лимфоцитов подвергались облучению непосредственно в ККМ, Т-лимфоциты являются уникальной моделью для изучения влияния ионизирующей радиации в условиях *in vivo*. Большой пласт радиобиологических работ выполнен на метафазных хромосомах Т-лимфоцитов вследствие простоты получения исходного материала и достаточно высокой концентрации клеток (нескольких миллионов в 1 мл крови). Т-лимфоциты не делятся в периферической крови и находятся в интерфазе, представляя из себя синхронизированную популяцию клеток с низким спонтанным уровнем аберраций хромосом. При этом высокая радиочувствительность и воспроизводимость результатов при облучении лимфоцитов в условиях *in vivo* и *in vitro* позволяет использовать их в качестве модельного объекта в радиобиологических исследованиях [18, 19].

На протяжении нескольких десятков лет в ФГБУН УНПЦ РМ изучаются отдалённые цитогенетические эффекты хронического облучения у людей, подвергшихся воздействию облучения в прибрежных сёлах р. Течи, но в настоящей работе впервые был применён анализ длины теломерных последовательностей с использованием метода FISH в комбинации с контрокрашиванием DAPI, что позволяет исследовать теломерные участки в каждой метафазной хромосоме [20, 21].

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В исследование включали:

– облучённых на Южном Урале лиц с рассчитанными индивидуализированными суммарными дозами от внешнего и внутреннего облучения (расчёты доз выполнены по системе TRDS-2016 в биофизической лаборатории). Эти люди входят либо в когорту р. Течи, либо в когорту IN UTERO облучённых лиц УНПЦ РМ. Группу облучённых людей составили 9 доноров женского пола с дозами на ККМ от 0,6 до 3,1 Гр возрастом от 70 до 84 лет (средний возраст 74,8 года);

– в группу сравнения включили 24 человека с дозами на ККМ от 0 до 0,07 Гр. Из них три донора в возрасте от 20 до 35 лет (облучению не подвергались), а 21 человек в возрасте от 61 до 83 лет (17 человек имели дозы от 0,001 до 0,07 Гр на ККМ, 4 человека аварийному облучению вообще не подвергались).

Всего выборка объединяла 33 чел. (24 женщины и 9 мужчин) в возрасте от 20 до 84 лет.

Корреляцию между длиной теломерного участка и размером плеча хромосомы оценили у 21 донора с дозами на ККМ от 0 до 0,07 Гр, из них 18 человек имели дозы от 0,001 до 0,07 Гр, а 3 человека хроническому облучению не подвергались. Возраст обследованных располагался в диапазоне от 61 до 83 лет.

Для исследования влияния пола на длину теломер сформировали две группы доноров, которые были выровнены по количеству обследованных лиц и их возрасту. В группу "Женщины" вошли 10 доноров в возрасте от 61 до 75 лет с дозой облучения на ККМ менее 0,01 Гр. Группа "Мужчины" состояла из 9 доноров в возрасте от 61 до 72 лет с дозой облучения на ККМ менее 0,01 Гр.

Для оценки зависимости относительной длины теломер от возраста обследованных группа необлучённых лиц была ранжирована по возрасту на момент обследования. Было выделено 3 возрастных периода: от 20 до 35 лет (3 чел.), от 61 до 67 лет (15 чел.) и старшая группа у необлучённых – от 71 до 83 лет (5 чел.).

Для изучения влияния хронического облучения на длину теломерных участков было сформировано две группы. Группу облучённых людей составили 9 доноров женского пола с до-

зами на ККМ от 0,6 до 3,1 Гр возрастом от 70 до 84 лет (средний возраст 74,8 года). Группа сравнения состояла из 12 доноров женского пола возрастом от 61 до 83 лет (средний возраст 68,4 года) и дозой облучения на ККМ менее 0,01 Гр.

Получение препаратов метафазных хромосом

Цитогенетические препараты из Т-лимфоцитов периферической крови доноров получали согласно протоколу, предложенному в [22], который включает четыре последовательных этапа: культивирование клеток до стадии метафазы, гипотоническую обработку метафазных клеток, фиксацию метафазных пластинок и, собственно, приготовление препаратов хромосом.

Метод Q-FISH

Для флюоресцентного окрашивания стекла сначала отмывали от цитоплазмы, затем проводили денатурацию и гибридизацию с теломерными зондами DAKO (Дания) (кат. номер K532611-8) в соответствии с протоколом производителя, к которому прилагались оригинальные растворы. После этого на стекло наносили по 10 мкл теломерных зондов и 10 мкл центромерных зондов производства Metasystems (Германия) (кат. номер D-0802-050-OR). Гибридизация зондов (флуоресцентно-меченных пептидных нуклеиновых кислот (PNA)) с денатурированной ДНК теломер проходила во влажной камере при комнатной температуре 24 ч.

Для отмывки несвязанных зондов препарат помещали в RS буфер для снятия покровного стекла. Затем в течение 5 мин препарат отмывали в буфере Wash Solution, нагретом до 65 °С. После этого стекло проводили через серию спиртов 70°, 90° и 95° и сушили на воздухе. Для контр-окрашивания на стекло добавляли 15 мкл DAPI в Mounting Medium и накрывали покровным стеклом.

Анализ флуоресцентно окрашенных препаратов проводили на флуоресцентном микроскопе AxioImager Z2 (Zeiss, Германия) с фильтрами DAPI и SpO (Spectrum Orange). Для

исследования отбирали метафазы, содержащие 45–46 хромосом без наложений, с хорошим разбросом. Их изображение оцифровывали и кариотипировали метафазную пластинку с использованием ПО Isis производства Metasystems (Германия).

Определение принадлежности теломер к хромосомам

Центромера делит тело хромосомы на два плеча. В зависимости от расположения центромеры, согласно Денверской классификации, различают следующие типы хромосом: акроцентрические – центромера смещена к одному из концов хромосомы, и одно плечо очень короткое; субметацентрические – центромера смещена от середины хромосомы и плечи имеют разную длину; метацентрические – центромера расположена посередине и плечи примерно одинаковой длины [23].

Кариотипирование с помощью ПО Isis

Для кариотипирования хромосом и определения принадлежности к какой-либо из хромосомных пар учитывали их морфологические и структурные особенности строения. Так как метод Q-FISH является количественным, для получения максимально точного результата все образцы при съёмке должны быть нормированы на объект с постоянной флуоресценцией. В нашем случае для этого использовали окрашивание центромерной области второй хромосомы, интенсивность сигнала которой принимали за 100 %. Измерения проводили с использованием теломерного модуля программы. В кариограмме при помощи двух горизонтальных линий для каждой хромосомы определяли область измерения (отдельно для р- и q-плеча хромосом). На второй паре хромосом, помимо этого, также обозначали область измерения центромерного сигнала. Результат выражали в процентах отношения длины теломерного (Т) сигнала к длине центромерного (С) – (% Т/С).

Цитогенетический анализ

Анализировали 20–30 метафаз на одного обследуемого. Из полученных измерений фор-

мировали таблицу для каждого хромосомного плеча в 46 хромосомах. В результатах представлена длина теломерных районов для пар метацентрических хромосом (#1, #3, #19, #20) и акроцентрических хромосом (#13, #14, #15, #21, #22). Оценивали показатели в зависимости от пола и возраста, изучали влияние хронического облучения на длину теломер.

Статистическая обработка

Для статистической обработки использовали программный пакет для статистического анализа STATISTICA 12, разработанный компанией StatSoft. Для сравнения показателей, полученных в двух группах, использовали непараметрический тест Манна-Уитни.

РЕЗУЛЬТАТЫ

В табл. 1 и 2 представлена медиана длины теломерных районов для метацентрических и акроцентрических хромосом у мужчин и женщин.

Как видно из табл. 1, у мужчин длина теломерных районов метацентрических хромосом в клетках была выше, чем у обследованных женщин. По критерию Манна-Уитни различия с уровнем значимости $p < 0,01$ наблюдались для всех хромосомных плеч.

Как видно из табл. 2, у мужчин длина теломерных районов в акроцентрических хромосомах также достоверно превышала подобный показатель в клетках у женщин.

В группе мужчин не было значимых отличий между медианами коротких и длинных плеч акроцентрических хромосом, что позволяет сделать вывод о том, что длина теломерного участка не зависит от размера плеча, на котором он расположен. У женщин в коротких плечах теломерные участки были несколько длиннее. Статистически значимые отличия были обнаружены в хромосомах #13, #14, #15 и #21 у женщин.

В табл. 3 и 4 представлена медиана длины теломерных районов для метацентрических и акроцентрических хромосом у облучённых людей и в группе сравнения.

У облучённых лиц показатели теломер в плечах акроцентрических хромосом 14p и 22p

Таблица 1

Длина теломерных районов (% T/C) в метацентрических хромосомах в зависимости от пола (медиана, 25 % и 75 %)

№ хромосомы	Плечо хромосомы	Мужчины, N = 9			Женщины, N = 10		
		медиана	процентиль		медиана	процентиль	
			25 %	75 %		25 %	75 %
1	p	24,1*	11,4	62,4	12,9	6,8	23,4
	q	25,9*	10,0	51,7	10,6	5,2	21,8
3	p	26,6*	11,5	69,3	12,2	6,1	24,8
	q	18,6*	8,2	53,5	11,3	5,5	21,2
19	p	14,9*	7,8	36,9	9,1	4,5	18,2
	q	13,5*	6,6	44,1	8,4	3,8	17,3
20	p	18,4*	9,1	43,6	12,6	7,0	21,5
	q	15,8*	6,8	42,8	9,35	4,5	16,0

Примечание. * – статистически значимое различие показателей по полу, $p < 0,01$.

Таблица 2

Медиана теломерных районов (% T/C) акроцентрических хромосом у мужчин и женщин (медиана, 25 % и 75 %)

№ хромосомы	Плечо хромосомы	Мужчины, N = 9			Женщины, N = 10		
		медиана	процентиль		медиана	процентиль	
			25 %	75 %		25 %	75 %
13	p	21,6*	9,9	60,0	13,5**	7,8	26,6
	q	21,0*	8,5	54,5	11,5	5,5	21,2
14	p	18,3*	8,5	51,4	13,1**	7,0	23,2
	q	20,8*	9,2	53,5	10,3	4,3	22,0
15	p	17,3*	8,3	49,2	13,4**	7,1	25,1
	q	16,6*	6,9	50,5	8,6	4,3	17,9
21	p	16,3*	7,0	54,2	12,2**	5,9	24,2
	q	14,2*	6,6	46,1	8,0	3,7	16,0
22	p	20,2*	8,6	59,5	10,1	5,6	21,4
	q	13,9*	5,8	42,0	8,4	4,4	16,4

Примечание: * – статистически значимое различие показателей по полу, $p < 0,05$; ** – статистически значимое отличие у женщин в коротких плечах, $p < 0,05$.

были достоверно выше, чем таковые в группе сравнения ($p < 0,05$). Для метацентрических хромосом такая зависимость не была обнаружена ни в одном из исследуемых плеч.

На рисунке представлены медианы длины теломер для доноров из группы сравнения в трёх возрастных группах: 20–35 лет, 61–67 лет, 71–83 года. В ходе анализа медианных показа-

телей, оцененных в каждой возрастной группе, получили статистически значимое снижение в зависимости от возраста ($p < 0,05$).

В ходе проведённого исследования были изучены теломерные участки хромосом в Т-клетках периферической крови у жителей прибрежных сёл р. Течи. Особенность хронического облучения этих людей заключается в том,

Таблица 3

Медиана теломерных районов (% T/C) в метацентрических хромосомах у облучённых людей и в группе сравнения (медиана, 25 % и 75 %)

№ хромосомы	Плечо хромосомы	Облучённые лица, N = 9			Облучённые лица, N = 12		
		медиана	процентиль		медиана	процентиль	
			25 %	75 %		25 %	75 %
1	p	14,8	6,5	37,3	12,8	6,7	23,2
	q	10,4	5,5	24,6	10,5	5,2	21,6
3	p	13,1	5,7	27,4	12,1	6,0	24,2
	q	10,0	5,0	22,7	11,1	5,4	20,1
19	p	8,9	3,9	20,6	9,1	4,5	17,8
	q	8,9	4,5	22,2	8,4	3,8	17,8
20	p	13,4	7,7	23,6	12,5	6,9	20,6
	q	8,6	4,6	19,8	9,3	4,5	15,9

Таблица 4

Медиана теломерных районов (% T/C) акроцентрических хромосом у облучённых людей и в группе сравнения (медиана, 25 % и 75 %)

№ хромосомы	Плечо хромосомы	Облучённые лица, N = 9			Облучённые лица, N = 12		
		медиана	процентиль		медиана	процентиль	
			25 %	75 %		25 %	75 %
13	p	17,8	8,5	33,2	13,5	7,8	26,4
	q	10,6	5,0	25,0	11,4	5,5	21,0
14	p	16,2**	9,4	29,0	13,1	7,0	22,4
	q	11,2	5,1	24,3	10,0	4,2	21,7
15	p	14,3	8,2	26,5	13,2	7,0	25,0
	q	9,3	4,1	20,5	8,6	4,3	17,2
21	p	14,7	7,1	26,0	12,2	6,0	24,1
	q	7,8	3,7	21,1	8,0	3,6	15,8
22	p	14,3**	7,1	26,9	9,8	5,5	21,0
	q	8,7	4,6	18,6	8,3	4,3	16,1

Примечание. ** – статистически значимое различие показателей, $p < 0,05$.

что воздействию подвергались клетки-предшественники Т-лимфоцитов в костном мозге, где основным дозообразующим радионуклидом был ^{90}Sr . Именно поэтому метафазные хромосомы Т-клеток периферической крови были выбраны нами в качестве модели. Основной акцент в нашей работе был сделан на изучении относительной длины теломерных районов в метацентрических и акроцентрических хромосомах, как наиболее различных по коэф-

фициенту отношения хромосомных плеч и по длине хромосом в целом. Мы остановили свой выбор на методе Q-FISH, который позволяет в ходе кариотипирования визуализировать длину каждой теломеры в конкретной паре хромосом либо отсутствие теломерного участка на хроматиде. В этом преимущество флуоресцентного подхода при сравнении с методом ПЦР, где для исследования разрушается структура хромосом, выделяется ДНК из всех клеток, что в

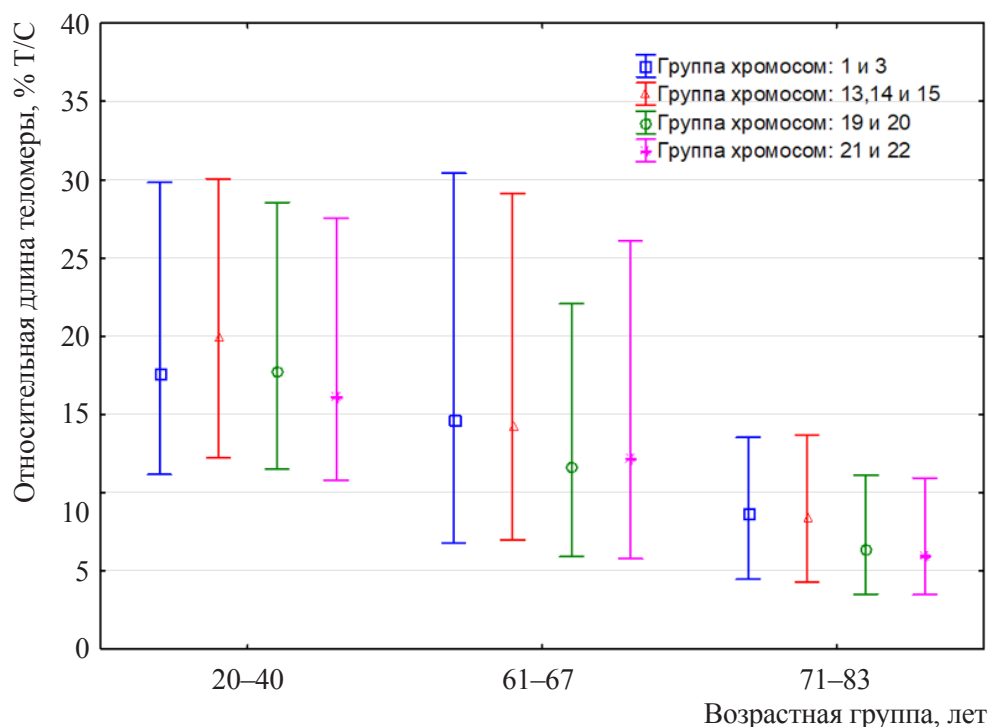


Рисунок. Медианы теломер для группы сравнения в трёх возрастных группах: 20–35 лет, 61–67 лет, 71–83 года

итоге позволяет получить только усреднённое значение теломерных районов ДНК для обследованного.

Мы провели сравнение теломерных районов внутри метацентрических и акроцентрических хромосом, которые различались по размеру (или по содержанию ДНК). Среди метацентриков самая крупная хромосома (#1) содержит примерно 8 % от всего ДНК-материала клетки, и самая маленькая хромосома (#20) содержит около 2,5 % всей ДНК клетки. К группе акроцентриков относятся хромосомы #13, #14, #15, каждая из которых содержит примерно от 3,5 до 4 % всей ДНК клетки, и хромосомы #21, #22, содержащие от 1,5 до 2 % всей ДНК клетки [23].

По нашим данным, относительная длина теломер у каждого донора варьируется в широком диапазоне. Теломеры по длине отличаются как в пределах одной клетки, так и в пределах одной хромосомной пары, что соответствует

литературным данным [24]. На протяжении всего цитогенетического анализа мы не отметили монотонного снижения длины теломер в Т-клетках, как можно было бы предположить, исходя из лимита Хейфлика (клетка при делении каждый раз теряет какое-то количество теломерных районов, что приводит к её гибели после ограниченного количества делений). Длина теломер хромосом даже в одной клетке широко варьировалась.

Результаты исследования позволили заключить, что длина теломерного района не зависит от размера хромосомы или плеча, на котором она расположена. Так, можно было бы ожидать, что у акроцентрических хромосом, где в микроскоп часто даже не видны верхние плечи, теломеры коротких плечей могут быть короче. Наоборот, у женщин в коротких плечах исследованных хромосом наблюдалась тенденция к удлинению теломерных участков. Статистически значимые отличия были обна-

ружены в хромосомах #13, #14, #15 и #21 (все акроцентрики).

В ходе исследования мы выявили зависимость длины теломерных участков хромосом от пола. Так, у мужчин длина теломер в исследованных группах хромосом была достоверно выше, чем у женщин (во всех плечах). Полученные нами результаты не согласуются с выводами некоторых авторов, исследовавших длину теломер на других популяциях [24, 25]. Показатель относительной длины теломер (медиан) достоверно снижается с возрастом ($p < 0,05$) при сравнении возрастных групп доноров 20–35 лет, 61–67 лет и 71–83 года (только группа сравнения), что согласуется с данными литературы о сокращении длины теломерных районов у человека с возрастом.

При исследовании влияния хронического облучения на длину теломер было обнаружено, что у облучённых женщин длина теломерных районов в плечах 14p и 22p достоверно превышала таковую по отношению к группе сравнения. Для остальных хромосом различий между сравниваемыми группами выявлено не было.

Результаты представленного исследования следует рассматривать как предварительные. Для их подтверждения выборка обследованных лиц будет расширена. Анализ данных позволяет нам быть уверенными в том, что у клетки существуют разные механизмы поддержания целостности хромосом, структура которых может быть изучена с применением высокотехнологических методических подходов.

ВЫВОДЫ

1. Длина теломерных районов хромосом достоверно снижается с возрастом ($p < 0,05$) между возрастными группами 20–35 лет, 61–67 лет и 71–83 года в группе сравнения.

2. Длина теломер в одной клетке широко варьируется. Так, в хромосоме #1 теломерные районы варьируются от 5,7 до 82,4 (% T/C), а в хромосоме #20 длина теломер находится в диапазоне от 5,43 до 65,98 (% T/C).

3. Длина теломерных районов – величина, не зависящая от размера хромосомы и хромосомного плеча. Статистически значимые отличия обнаружены в хромосомах #13, #14, #15 и #21 у женщин, где длина теломерных районов

коротких плеч превышала значения длины теломер в длинных плечах.

4. У мужчин во всех плечах по выбранным хромосомам показатель длины теломер имеет более высокие значения, чем у женщин ($p < 0,05$).

5. В группе облучённых людей длина теломерных районов в акроцентрических хромосомах была достоверно выше, чем в группе сравнения в коротких плечах #14p и #22p хромосом.

ЛИТЕРАТУРА

1. Moller P., Mayer S., Mattfeldt T. et al. Sex-related differences in length and erosion dynamics of human telomeres favor females // *Aging*. – 2009. – V. 1. – No 8.
2. Hayflick L., Moorhead P.S. The serial cultivation of human diploid cell strains // *Exp. Cell Res.* – 1961. – No. 25. – P. 585–621.
3. Olovnikov A.M. A theory of marginotomy. The incomplete copying of template margin in enzymic synthesis of polynucleotides and biological significance of the phenomenon // *J. of theoretical biology*. – 1973. – V. 41. – No. 1. – P. 181–190.
4. Henderson S. In situ analysis of changes in telomere size during replicative aging and cell transformation // *J. of cell biology*. – 1996. – V. 134. – No. 1. – P. 1–12.
5. Lansdorp P.M. et al. Heterogeneity in telomere length of human chromosomes // *Human Molecular Genetics*. – 1996. – V. 5. – No. 5. – P. 685–691.
6. Драпкина О.М., Шепель Р.Н. Теломеры и хроническая сердечная недостаточность // *Кардиология*. – 2014. – Т. 54. – № 4. – С. 60–67.
7. Борисов В.И., Кожевников В.С., Сениюков В.В. и др. Раннее старение иммунной системы при ревматоидном артрите // *Российский иммунологический журнал*. – 2007. – Т. 1(10). – № 2. – С. 144–149.
8. Turner K.J., Vasu V., Griffin D. Telomere biology and human phenotype // *Cells*. – 2019, Jan 19. – V. 8. – No. 1. – P. 73. – DOI: 10.3390/cells8010073
9. McKenna M., Robinson E., Taylor L. Chromosome translocations, inversions and telomere length for retrospective biodosimetry on exposed U.S. atomic veterans // *Radiation research*. – 2019. – V. 191. – No. 4. – DOI: 10.1667/RR15240.1

10. Berglund K., Reynolds C., Ploner A. et al. Longitudinal decline of leukocyte telomere length in old age and the association with sex and genetic risk // *Aging*. – 2016. – V. 8. – No. 7. – P. 1398–1415. – DOI: 10.18632/aging.100995
11. Fischer K., Riddle N. Sex differences in aging: genomic instability // *The journals of gerontology. Series A, Biological sciences and medical sciences*. – 2018. – V. 73. – No. 2. – P. 166–174. – DOI: 10.1093/gerona/glx105
12. Reste J., Zvigule G., Zvagule T. et al. Telomere length in Chernobyl accident recovery workers in the late period after the disaster // *Radiation Research*. – 2014. – V. 55. – No. 6. – P. 1089–1100. – DOI: 10.1093/jrr/rru060. Epub 2014 Jul 11
13. Berardinelli F., Nieri D., Sgura A. et al. Telomere loss, not average telomere length, confers radiosensitivity to TK6-irradiated cells // *Mutation research/fundamental and molecular mechanisms of mutagenesis*. – 2012. – V. 740. – Issue 1–2. – P. 13–20.
14. Scherthan H., Sotnik N., Peper M. et al. Telomere length in aged Mayak PA nuclear workers chronically exposed to internal alpha and external gamma radiation // *Radiation research*. – 2016. – V. 185. – No. 6. – P. 658–667.
15. Butler M.G. Comparison of chromosome telomere integrity in multiple tissues from subjects at different ages // *Cancer genetics and cytogenetics*. – 1998. – V. 105. – No. 2. – P. 138–144.
16. Andrews N. P. Telomeres and immunological diseases of aging // *Gerontology*. – 2010. – V. 56. – No. 4. – P. 390–403.
17. Последствия радиоактивного загрязнения реки Течи / Под ред. проф. А.В. Аклеева. – Челябинск, 2016. – 400 с.
18. Севаньяев А.В. Радиочувствительность хромосом лимфоцитов человека в митотическом цикле. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 160 с.
19. Дёмина Э.А. Радиочувствительность хромосом лимфоцитов периферической крови человека и митотический цикл // *Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля*. – 2005. – № 3. – С. 80–87.
20. Возилова А.В. Отдалённые цитогенетические эффекты хронического облучения населения Южного Урала: Автореферат диссертации. – Челябинск, 1997.
21. Poon S., Martens U., Ward R. et al. Telomere length measurements using digital fluorescence microscopy // *Cytometry*. – 1999. – V. 36. – P. 267–278.
22. Vozilova A.V., Shagina N.B., Degteva M.O. et al. Chronic radioisotope effects on residents of the Techa river (Russia) region: cytogenetic analysis more than 50 years after onset of exposure // *Mutation Research*. – 2013. – V. 756. – No. 1–2. – P. 115–118.
23. An international system for human cytogenomic nomenclature – Basel: S. Karger. – 2016. – 140 p. DOI: 10.1159/isbn.978-3-318-06861-0
24. Aubert G., Lansdorp P.M. Telomeres and aging. // *Physiological reviews*. – 2008. – V. 88. – No. 2. – P. 557–579.
25. Lulkiewicz M., Bajsart J. Telomere length: how the length makes a difference // *Molecular biology report*. – 2020. – V. 47. – P. 7181–7188.

УДК 616.33-006.6

© 2022

ПОКАЗАТЕЛИ ЗАБОЛЕВАЕМОСТИ РАКОМ ЖЕЛУДКА В КОГОРТЕ РАБОТНИКОВ ПРЕДПРИЯТИЯ АТОМНОЙ ПРОМЫШЛЕННОСТИ

Г.В. Жунтова, Т.В. Азизова, Е.С. Григорьева

Россия, г. Озёрск, ФГБУН "Южно-Уральский институт биофизики" ФМБА России

Т.П. Заварухина, Е.П. Фомин

Россия, г. Озёрск, ФГБУЗ "Клиническая больница № 71" ФМБА России

Рак желудка (РЖ) занимает ведущие позиции в структуре заболеваемости и смертности от злокачественных новообразований. Данные о влиянии ионизирующего излучения на возникновение РЖ неоднозначны.

Исследованы показатели заболеваемости РЖ в когорте работников предприятия атомной промышленности, подвергшихся пролонгированному общему внешнему γ -облучению и внутреннему α -облучению от инкорпорированного плутония.

Обнаружено увеличение стандартизованных по возрасту и полу показателей заболеваемости РЖ, связанное с профессиональным внешним γ -облучением, при поглощённой в стенке желудка дозе более 0,2 Гр. Влияния внутреннего α -облучения на показатели заболеваемости РЖ в изучаемой когорте не выявлено.

В изучаемой когорте, как и в общей популяции, показатели заболеваемости РЖ зависели от нерадикационных факторов: пол, достигнутый возраст, календарный период наблюдения, статус и величина индекса курения, употребление алкоголя, язвенная болезнь желудка и 12-перстной кишки.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: РАК ЖЕЛУДКА, ВНЕШНЕЕ γ -ОБЛУЧЕНИЕ, ВНУТРЕННЕЕ α -ОБЛУЧЕНИЕ, КУРЕНИЕ, АЛКОГОЛЬ, ЯЗВЕННАЯ БОЛЕЗНЬ

Рак желудка (РЖ) занимает второе место в структуре смертности и четвёртое место в структуре заболеваемости злокачественными новообразованиями (ЗНО) в мире [1]. Несмотря на устойчивую тенденцию к снижению заболеваемости РЖ в течение последних десятилетий, этот вид опухолей по-прежнему наносит существенный социально-экономический ущерб. Россия входит в число стран с высокой заболеваемостью и смертностью от РЖ [2].

Факторами, повышающими риск развития РЖ, являются инфицирование *Helicobacter pylori* (*H. pylori*), особенности питания, генетическая предрасположенность [3–4]. Установлена роль вредных производственных агентов в этиологии этого заболевания (асбест, хром, никель, уголь, ароматические углеводороды и др.) [5].

Связь между радиационным воздействием и возникновением РЖ продемонстрирована в эпидемиологических исследованиях среди жителей г. Хиросимы и г. Нагасаки, выживших после атомной бомбардировки, а также среди

пациентов, перенёсших лучевую терапию [6–8]. У работников Производственного объединения "Маяк" (ПО "Маяк"), подвергшихся пролонгированному облучению в высоких дозах в первые годы после ввода предприятия в эксплуатацию, было отмечено увеличение риска ЗНО, однако данные, касающиеся РЖ, неоднозначны [9–11].

В настоящее время, благодаря развитию системы дозиметрии профессионального облучения персонала ПО "Маяк", стали доступны оценки поглощённых в желудке доз внешнего γ - и внутреннего α -излучения [12–13]. Таким образом, сложились предпосылки для продолжения исследования и уточнения полученных ранее результатов.

Целью настоящего исследования являлась оценка влияния профессионального облучения на заболеваемость РЖ в когорте работников, впервые нанятых на основные заводы ПО "Маяк" в 1948–1982 гг., с учётом влияния нерадикационных факторов.

МАТЕРИАЛ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Исследование выполнено в когорте работников, впервые нанятых на основные заводы ПО "Маяк" (реакторный, радиохимический и плутониевый) в 1948–1982 гг., включавшей 22377 чел., из них 25 % – женщины. Период наблюдения продолжался с момента найма работников на ПО "Маяк" до 31.12.2013 (даты диагностики РЖ, даты смерти, если эти события наступили ранее) или даты последней медицинской информации (для лиц, выбывших из-под наблюдения). По состоянию на 31.12.2013 жизненный статус установлен для 95 % членов когорты, из них 62 % умерли и 38 % были живы. Средний возраст (\pm стандартное отклонение) на момент смерти у мужчин – $61,5 \pm 13,6$ лет; у женщин – $70,5 \pm 12,4$ лет; а средний возраст тех, кто был жив на конец 2013 г., составил $68,5 \pm 10,4$ лет (мужчины) и $76,6 \pm 9,8$ лет (женщины).

Благодаря специальной системе медицинского наблюдения персонала с момента ввода ПО "Маяк" в эксплуатацию, включавшей ежегодные медицинские осмотры, углублённые обследования в специализированном стационаре с интервалом в 3–5 лет, продолжавшиеся и после выхода работников на пенсию, для анализа доступна подробная информация о заболеваемости и основных нерадиационных факторах риска. Сведения о перенесённых заболеваниях за весь период наблюдения собраны на 21740 (97 %) членов изучаемой когорты, для большинства из них известно отношение к курению (93 % работников) и его количественные характеристики (71 % работников), а также отношение к употреблению алкоголя (85 % работников).

Для интегральной оценки интенсивности и продолжительности курения использовался индекс курения (ИК), который вычисляли следующим образом: $ИК = \text{количество пачек сигарет, выкуриваемых ежедневно} \times \text{продолжительность курения (пачка} \times \text{лет)}$. Сведения о злоупотреблении алкоголем (бытовое пьянство, хронический алкоголизм) основаны на данных наркологической службы. Информация о возможном контакте с вредными производственными факторами во время работы на других

предприятиях до найма на ПО "Маяк" была получена при опросе работников во время предварительного медицинского осмотра при найме на предприятие.

Персонал всех основных заводов ПО "Маяк" подвергался общему внешнему γ -облучению, а работники радиохимического и плутониевого заводов помимо этого подвергались воздействию α -активных аэрозолей ^{239}Pu . В настоящем исследовании использованы оценки доз хронического профессионального облучения персонала, рассчитанные на основе дозиметрических систем: "Дозиметрическая система работников ПО "Маяк" – 2008" – дозы внешнего γ -облучения и "Дозиметрическая система работников ПО "Маяк" – 2013" – дозы внутреннего α -облучения от инкорпорированного плутония [12, 13]. Поглощённые в стенке желудка дозы внешнего γ - и внутреннего α -излучения, а также статус и величина индекса курения, отношение к употреблению алкоголя учитывались на момент окончания наблюдения в когорте (диагностики РЖ).

Кроме этого, исследовалось влияние на заболеваемость РЖ следующих болезней пищеварительной системы: эзофагит, гастроэзофагеальный рефлюкс, язвенная болезнь желудка и 12-перстной кишки, гастрит и дуоденит, доброкачественные новообразования желудка (коды K20–K21, K25–K26, K29, D13.1 МКБ-10). Перечисленные выше заболевания учитывались на дату, предшествующую на 2 года дате диагностики РЖ, чтобы исключить влияние уже существующего, но ещё не диагностированного опухолевого процесса.

В исследование включены 343 случая РЖ (код C16 МКБ-10), диагностированных у работников изучаемой когорты с момента найма на ПО "Маяк" до 31.12.2013 и подтверждённых в процессе ретроспективной экспертизы информации, зафиксированной в медицинской документации. У 248 (72 %) работников диагноз РЖ был подтверждён результатами гистологического исследования, в остальных случаях – на основании клинических данных (опухоль была обнаружена при эндоскопическом или рентгенологическом исследовании, либо во время оперативного вмешательства и в дальнейшем имелись характерные признаки опухолевой прогрессии).

Рассчитывались "грубые" и стандартизованные показатели заболеваемости. Стандартизация была выполнена косвенным методом с использованием в качестве внутреннего стандарта повозрастного распределения всей изучаемой когорты работников ПО "Маяк" в целом [14]. Для оценки статистической значимости разницы средних величин использовали t-критерий Стьюдента. Различия считали значимыми при $p < 0,05$.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

По состоянию на 31.12.2013 в изучаемой когорте диагностировано 343 случая РЖ (из них 82 % у мужчин). Соотношение мужчин и женщин в изучаемой когорте составляло 3 : 1, в то время как среди заболевших РЖ – 4 : 1. Стандартизованный по возрасту показатель заболеваемости РЖ у мужчин ($79,73 \pm 4,49$ на 100 тыс. чел.) был выше, чем у женщин ($29,51 \pm 4,19$ на 100 тыс. чел.), различия яв-

лялись статистически значимыми ($p < 0,001$). Средний возраст (\pm стандартное отклонение) на момент диагностики РЖ у мужчин составил $60,1 \pm 12,9$ лет, у женщин – $65,0 \pm 12,8$ лет. Повозрастные показатели заболеваемости РЖ в изучаемой когорте повышались с увеличением достигнутого возраста и статистически значимо ($p < 0,05$) отличались в последовательных возрастных категориях у мужчин и женщин (кроме категорий 50–59 и 60–69 лет у женщин) (рис. 1).

Полученные результаты согласуются с популяционными данными. Известно, что заболеваемость РЖ прогрессивно увеличивается с возрастом, особенно после 50 лет и достигает максимума к 70–75 годам [1–2]. У мужчин РЖ встречается чаще, чем у женщин приблизительно в 1,5–2,5 раза. Половые различия в заболеваемости связывают, главным образом, с особенностями питания и различной распространенностью курения и контакта с вредными производственными факторами у мужчин и женщин [15].

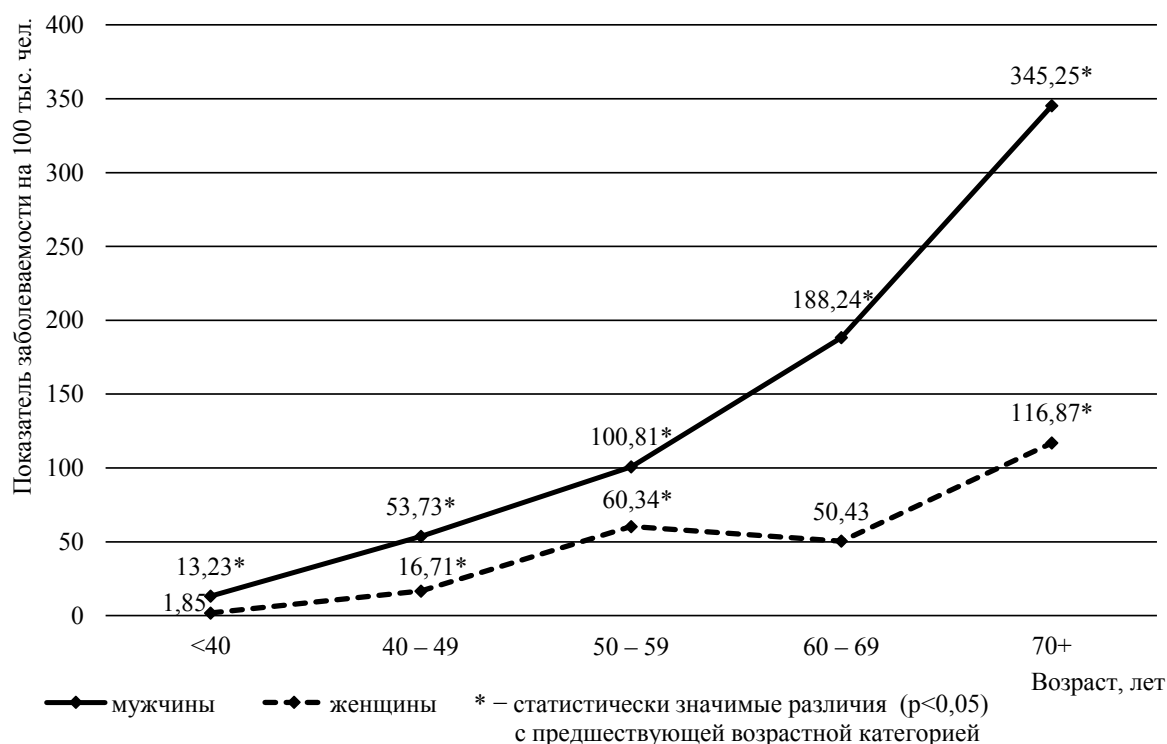


Рис. 1. Повозрастные показатели заболеваемости раком желудка у работников изучаемой когорты в зависимости от пола

Динамика "грубых" и стандартизованных показателей заболеваемости РЖ в изучаемой когорте в зависимости от календарного периода представлена на рис. 2.

Увеличение "грубых" показателей заболеваемости РЖ в изучаемой когорте к концу периода наблюдения обусловлено увеличением возраста работников. Обнаружен убывающий статистически значимый линейный тренд (коэффициент детерминации $R^2=0,9324$; $p<0,05$) для стандартизованных по полу и возрасту показателей заболеваемости РЖ с увеличением календарного периода наблюдения. Следует отметить, что во многих странах мира, включая Россию, в последние десятилетия также наблюдалось снижение показателей заболеваемости РЖ [1–2].

Стандартизованные по полу и возрасту показатели заболеваемости РЖ у работников, которые когда-либо курили, были почти в 2 раза выше по сравнению с теми, кто никогда не курил, и зависели от величины индекса курения (табл. 1).

Наблюдалось увеличение показателей заболеваемости РЖ в 2 раза при индексе курения 10–20 пачка×лет и в 2,5 раза, если индекс курения превышал 20 пачка×лет (по сравнению с работниками, у которых индекс курения был менее 10 пачка×лет). Перечисленные выше различия являлись статистически значимыми ($p<0,05$). Полученные оценки хорошо согласуются с эпидемиологическими данными о влиянии курения на заболеваемость РЖ, но не во всех исследованиях удаётся установить зависимость риска РЖ от количественных характеристик курения, в частности от индекса курения [16].

В изучаемой когорте обнаружено статистически значимое повышение стандартизованных по полу и возрасту показателей заболеваемости РЖ у работников, умеренно употреблявших алкоголь (в 1,5 раза) и злоупотреблявших спиртными напитками (в 2,2 раза), по отношению к тем, кто употреблял алкоголь редко (табл. 1). Следует отметить, что до настоящего времени данные о влиянии алкоголя

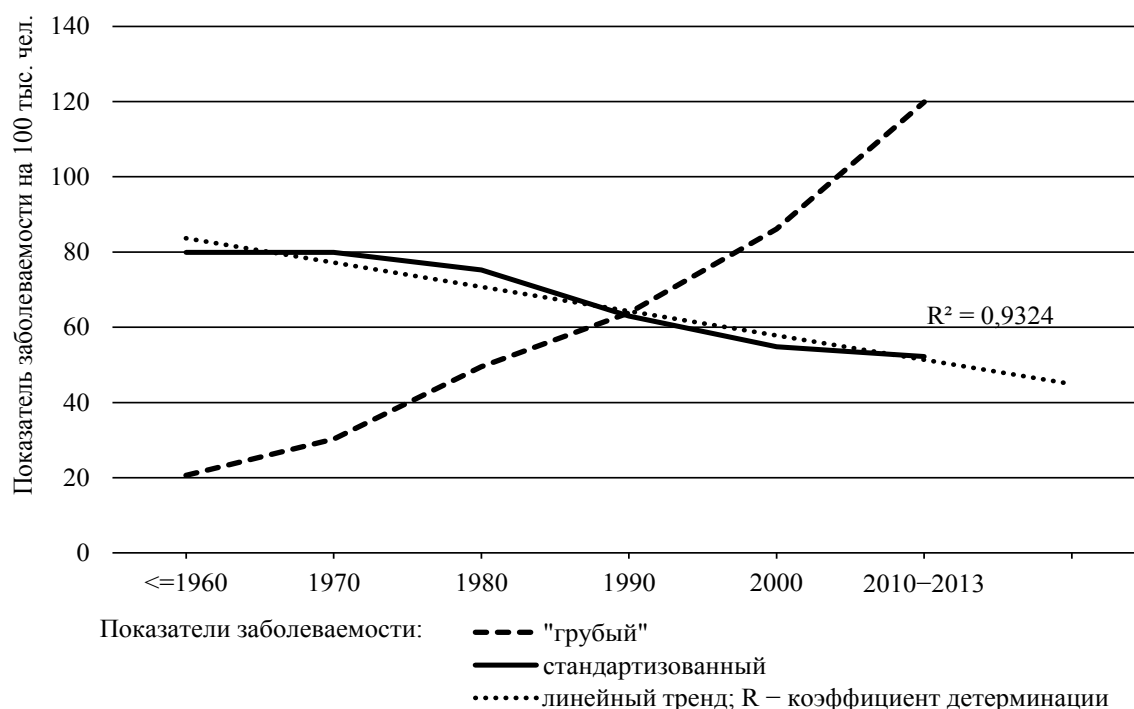


Рис. 2. Динамика "грубых" и стандартизованных по полу и возрасту показателей заболеваемости раком желудка у работников изучаемой когорты в течение периода наблюдения

Таблица 1

Показатели заболеваемости раком желудка в изучаемой когорте в зависимости от нерадикационных факторов

Факторы	Человеко-годы наблюдения	Число случаев		Показатель заболеваемости	
		фактическое	ожидаемое	"грубый"	стандартизованный
Статус курения:					
не курили никогда	241 394	110	168,03	45,57±4,34	39,76±4,06
курили когда-либо	314 363	225	170,23	71,57±4,77	80,29±5,05*
Индекс курения, пачка×лет					
<10	75 239	15	24,3	19,94±5,15	37,50±7,06
10–20	67 441	33	28,74	48,93±8,52	69,74±10,17*
≥20	108 896	141	89,7	129,48±10,90	95,48±9,36*
Употребление алкоголя:					
редко	101 694	47	74,93	46,22±6,74	38,10±6,12
умеренно	300 274	169	182,46	56,28±4,33	56,26±4,33*
злоупотребление	132 316	97	71,41	73,31±7,44	82,51±7,90*
Контакт с вредными производственными факторами до найма на ПО "Маяк":					
нет	242 624	113	121	46,57±4,38	56,73±4,84
возможно	112 090	72	77,08	64,23±7,57	56,74±7,11
да	186 202	142	129,57	76,26±6,40	66,57±5,98
Эзофагит, гастроэзофагеальный рефлюкс:					
нет	561 803	338	338,61	60,16±3,27	60,63±3,29
да	2 861	5	4,39	174,78±78,16	69,19±49,18
Язвенная болезнь желудка:					
нет	548 890	312	327,17	56,84±3,22	57,93±3,25
да	15 773	31	15,83	196,53±35,30	118,99±27,47*
Язвенная болезнь 12-перстной кишки:					
нет	535 042	326	315,44	60,93±3,37	62,78±3,43
да	29 622	17	27,56	57,39±13,92	37,46±11,25*
Гастрит, дуоденит:					
нет	356 574	149	160,74	41,79±3,42	56,31±3,97
да	208 091	194	182,26	93,23±6,69	64,66±5,57
Доброкачественные новообразования желудка:					
нет	558 750	337	335,12	60,31±3,29	61,08±3,31
да	5 914	6	7,88	101,45±41,42	46,26±27,97

Примечание. * – статистически значимые различия ($p < 0,05$) с категорией, где действие фактора отсутствует или минимально.

на заболеваемость РЖ неоднозначны [17].

Стандартизованные показатели заболеваемости РЖ были выше в 2 раза у работников с язвенной болезнью желудка по сравнению с теми, у кого не было выявлено этого заболевания, а при наличии язвенной болезни 12-перстной кишки, наоборот, наблюдалось снижение показателей заболеваемости РЖ (табл. 1). Указанные различия являлись статистически значимыми ($p < 0,05$). Влияния других заболеваний пищеварительной системы на заболеваемость РЖ в изучаемой когорте не выявлено.

К сожалению, в рамках ретроспективного исследования невозможно было учесть роль таких важных этиологических факторов РЖ, как инфицирование *H. pylori* и наличие атрофии слизистой оболочки желудка. Известно, что инфицирование *H. pylori* приводит к различным клиническим эффектам в зависимости от локализации в желудке и особенностей течения воспалительного процесса, вызываемого этим возбудителем [4]. Установлено, что *H. pylori*-ассоциированный атрофический гастрит и язвенная болезнь желудка увеличивают риск РЖ, главным образом, дистальных отделов [4, 18]. В то же время, при развитии язвенной болезни 12-перстной кишки или хронического гастрита

с повышенной секреторной функцией риск РЖ снижается [4, 18].

В изучаемой когорте не обнаружено влияния контакта с вредными производственными факторами во время работы на других предприятиях, до найма на ПО "Маяк", на заболеваемость РЖ. Следует отметить, что эта информация была получена со слов работников и не подкреплена количественными характеристиками.

В табл. 2 представлены стандартизованные по полу и возрасту показатели заболеваемости РЖ у работников изучаемой когорты в зависимости от поглощённой в стенке желудка дозы внешнего γ - и внутреннего α -излучения, накопленной к концу периода наблюдения. Обнаружено статистически значимое увеличение показателей заболеваемости РЖ приблизительно в 2 раза среди работников, у которых поглощённая в стенке желудка доза внешнего γ -излучения была более 0,2 Гр (по отношению к наименьшей дозовой градации). Влияния внутреннего α -облучения на заболеваемость раком желудка не установлено.

Ранее влияние внешнего γ -облучения на риск РЖ у работников ПО "Маяк" было показано при более высоких дозах общего внешнего

Таблица 2

Показатели заболеваемости раком желудка в изучаемой когорте в зависимости от дозы профессионального внешнего γ - и внутреннего α -облучения

Факторы	Человеко-годы наблюдения	Число случаев		Показатель заболеваемости	
		фактическое	ожидаемое	"грубый"	стандартизованный
Доза внешнего γ -облучения, Гр:					
0–0,2	284 905	123	154,99	43,17±3,89	48,21±4,11
0,2–0,5	107 451	83	71,49	77,24±8,48	70,53±8,10*
0,5–1,0	71 569	58	50,87	81,04±10,64	69,26±9,84*
>1,0	82 144	79	62,14	96,17±10,82	77,22±9,70*
Доза внутреннего α -облучения, Гр:					
0–0,0002	218 170	100	118,18	45,84±4,58	51,40±4,85
0,0002–0,001	63 945	56	60,14	87,58±11,70	56,57±9,41
0,001–0,005	27 253	34	31,29	124,76±21,40	66,01±15,56
>0,005	6 705	10	7,33	149,14±47,16	82,83±35,15

Примечание: § – поглощённая в стенке желудка доза внешнего γ - или внутреннего α -излучения, накопленная к окончанию периода наблюдения; * – статистически значимые различия ($p < 0,05$) с наименьшей дозовой категорией.

γ-облучения (более 3,0 Гр) [9]. Следует подчеркнуть, что настоящее исследование основано на оценках поглощённых в стенке желудка доз внешнего γ- и внутреннего α-излучения, охватывает более продолжительный период наблюдения (период увеличен на 15 лет), отличается по дизайну.

Повышенный риск РЖ обнаружен в эпидемиологических исследованиях среди переживших атомную бомбардировку в Японии, подвергшихся острому γ-нейтронному облучению, у пациентов, перенёсших γ-терапию по поводу лимфомы Ходжкина, опухолей шейки матки, яичек [6–8, 19–20].

В большинстве исследований, охватывающих персонал ядерных производств, население, проживающее на территориях, загрязнённых радиоактивными выбросами и в зонах повышенного естественного радиационного фона, не обнаружено убедительных доказательств увеличения риска рака желудка вследствие радиационного воздействия в малых дозах [21–23]. Так, при анализе данных в объединённой когорте, включавшей около 600 тыс. работников 154 ядерных предприятий из 15 стран, не выявлено увеличения риска рака желудка при средней кумулятивной дозе облучения около 19,4 мЗв [22]. В исследовании, выполненном среди работников ядерной промышленности Франции, Соединённого Королевства и США, не было получено убедительных данных о влиянии ионизирующего излучения на риск рака желудка [23].

При поступлении в организм радионуклидов, являющихся α-излучателями (радия, тория, радона, плутония), не выявлено канцерогенных эффектов со стороны желудка, что объясняют малой величиной доз, приходящихся на этот орган [24–27].

Для уточнения полученных данных о влиянии профессионального внешнего γ-облучения на заболеваемость РЖ у работников ПО "Маяк" требуется оценка радиогенного риска с учётом действия нерадиационных факторов и исследование дозовой зависимости.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Обнаружено статистически значимое увеличение стандартизованных по возрасту и

полу показателей заболеваемости РЖ в когорте работников ПО "Маяк", связанное с профессиональным общим внешним γ-облучением, при поглощённой в стенке желудка дозе более 0,2 Гр.

Влияния внутреннего α-облучения от инкорпорированного ^{239}Pu на заболеваемость РЖ у работников ПО "Маяк" не выявлено.

Показатели заболеваемости РЖ у работников ПО "Маяк" зависели также от нерадиационных факторов: пол, достигнутый возраст, календарный период наблюдения, статус и величина индекса курения, употребление алкоголя, язвенная болезнь желудка и 12-перстной кишки.

ЛИТЕРАТУРА

1. Sung H., Ferlay J., Siegel R.L. et al. Global cancer statistics 2020: GLOBOCAN estimates of incidence and mortality worldwide for 36 cancers in 185 countries // *CA Cancer J. Clin.* – 2021. – V. 71. – No. 3. – P. 209–249.
2. Злокачественные новообразования в России в 2020 году (заболеваемость и смертность) / Под ред. А.Д. Каприна, В.В. Старинского, А.О. Шахзадовой. – М.: МНИОИ им. П.А. Герцена – филиал ФГБУ "НМИЦ радиологии" Минздрава России, 2021. – 252 с.
3. Lyons K., Le L.C., Pham Y.T. et al. Gastric cancer: epidemiology, biology, and prevention: a mini review // *Eur. J. Cancer Prev.* – 2019. – V. 28. – No. 5. – P. 397–412.
4. Leja M., Grinberga-Derica I., Bilgiler C., Steininger C. Review: epidemiology of *Helicobacter pylori* infection // *Helicobacter.* – 2019. – Suppl 1. – P. e12635.
5. Khazaei S., Mohammadbeigi A., Jenabi E. et al. Environmental and ecological factors of stomach cancer incidence and mortality: a systematic review study on ecological studies // *Rev. Environ. Health.* – 2020. – V. 35. – No. 4. – P. 443–452.
6. Sakata R., Preston D.L., Brenner A.V. et al. Radiation-related risk of cancers of the upper digestive tract among Japanese atomic bomb survivors // *Radiat. Res.* – 2019. – V. 192. – No. 3. – P. 331–344.
7. Berrington de Gonzalez A., Gilbert E., Curtis R. et al. Second solid cancers after radiation therapy: a systematic review of the epidemiologic studies

- of the radiation dose-response relationship // *Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys.* – 2013. – V. 86. – No. 2. – P. 224–233.
8. Gilbert E.S., Curtis R.E., Hauptmann M. et al. Stomach cancer following Hodgkin lymphoma, testicular cancer and cervical cancer: A pooled analysis of three international studies with a focus on radiation effects // *Radiat. Res.* – 2017. – V. 187. – No. 2. – P. 186–195.
9. Жунтова Г.В., Токарская З.Б., Беляева З.Д. Влияние радиационных и нерадиационных факторов риска на заболеваемость раком желудка у работников ПО "Маяк" // *Мед. радиол. и рад. безопасность.* – 2009. – Т. 54. – № 2. – С. 38–46.
10. Hunter N., Kuznetsova I.S., Labutina E.V., Harrison J.D. Solid cancer incidence other than lung, liver and bone in Mayak workers: 1948–2004 // *Br. J. Cancer.* – 2013. – V. 109. – No. 7. – P. 1989–1996.
11. Sokolnikov M., Preston D., Gilbert E. et al. 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. – No. 2. – P. e0117784.
12. Dorrian M.D., Birchall A., Vostrotin V.V. Mayak Worker Dosimetry System (MWDS-2013): Phase I – Quality assurance of organ doses and excretion rates from internal exposures of plutonium-239 for the Mayak Worker Cohort // *Radiat. Prot. Dosimetry.* – 2017. – V. 176. – No. 1–2. – P. 166–181.
13. Vasilenko E.K., Khokhryakov V.F., Miller S.C. et al. Mayak worker dosimetry study: an overview // *Health Phys.* – 2007. – V. 93. – No. 3. – P. 190–206.
14. Санитарная статистика (пособие для врачей) / Мерков А.М., Поляков Л.Е. – М.: Атомиздат, 1975. – 245 с.
15. Li W.Y., Han Y., Xu H.M. et al. Smoking status and subsequent gastric cancer risk in men compared with women: a meta-analysis of prospective observational studies // *BMC Cancer.* – 2019. – V. 19. – No. 1. – P. 377.
16. Ferro A., Morais S., Rota M. et al. Tobacco smoking and gastric cancer: meta-analyses of published data versus pooled analyses of individual participant data (StoP Project) // *Eur. J. Cancer Prev.* – 2018. – V. 27. – No. 3. – P. 197–204.
17. Ferro A., Morais S., Rota M. et al. Alcohol intake and gastric cancer: Meta-analyses of published data versus individual participant data pooled analyses (StoP Project) // *Cancer Epidemiol.* – 2018. – No. 54. – P. 125–132.
18. Waldum H., Fossmark R. Gastritis, gastric polyps and gastric cancer // *Int. J. Mol. Sci.* – 2021. – V. 22. – No. 12. – P. 6548.
19. Kleinerman R. A., Smith S.A., Holowaty E. et al. Radiation dose and subsequent risk for stomach cancer in long-term survivors of cervical cancer // *Int. J. Radiat. Oncol. Biol. Phys.* – 2013. – No. 86. – P. 922–929.
20. Hauptmann M., Fossa S.D., Stovall M. et al. Increased stomach cancer risk following radiotherapy for testicular cancer // *Br. J. Cancer.* – 2015. – V. 112. – No. 1. – P. 44–51.
21. Tao Z., Akiba S., Zha Y. et al. Cancer and non-cancer mortality among inhabitants in the high background radiation area of Yangjiang, China (1979–1998) // *Health Phys.* – 2012. – V. 102. – No. 2. – P. 173–181.
22. Cardis E., Vrijheid M., Blettner M. et al. The 15-country collaborative study of cancer risk among radiation workers in the nuclear industry: estimates of radiation-related cancer risks. // *Radiat. Res.* – 2007. – V. 167. – No. 4. – P. 396–416.
23. 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. h5359.
24. Stebbings J.H. Health risks from radium in workplaces: an unfinished story // *Occup. Med.* – 2001. – V. 16. – No. 2. – P. 259–270.
25. Mori T., Kato Y., Hatakeyama S. et al. Results of the first series of follow-up studies on Japanese Thorotrast patients and their relationships to an autopsy series // *Radiat. Res.* – 1999. – V. 152. – No. 6. – P. S72–S80.
26. Mozzoni P., Pinelli S., Corradi M. et al. Environmental/occupational exposure to radon and non-pulmonary neoplasm risk: a review of epidemiologic evidence // *Int. J. Environ. Res. Public Health.* – 2021. – V. 18. – No. 19. – P. 10466.
27. Wing S., Richardson D., Wolf S., Mihlan G. Plutonium-related work and cause-specific mortality at the United States Department of Energy Hanford Site // *Am. J. Ind. Med.* – 2004. – V. 45. – No. 2. – P. 153–164.

К 50-ЛЕТИЮ СЕРГЕЯ ВЛАДИМИРОВИЧА КРИВОВИЧЕВА



4 сентября исполнилось 50 лет доктору геолого-минералогических наук, академику РАН **Сергею Владимировичу Кривовичеву**. Основные научные интересы Сергея Владимировича связаны с кристаллохимией минералов и её применением к решению фундаментальных проблем современной геохимии, геологии и наук о материалах, в том числе для фундаментальной и прикладной радиохимии. С.В. Кривовичев является соавтором открытия более 90 новых минеральных видов из месторождений России и зарубежных стран, установления кристаллических структур более 500 минералов и неорганических соединений. Полученные С.В. Кривовичевым данные позволили значительно расширить имеющиеся представления о разнообразии минерального мира, формах нахождения редких элементов в кристаллических структурах. Так, посвящая свои усилия созданию теории сложности кристаллических структур, Кривовичев создал универсальный метод классификации их сложности с применением теории информации. Основываясь на полученных расчётах, он показал, что процесс эволюции минерального мира сопровождается структурно-химическим усложнением минеральных видов. Эти работы получили мировое признание и широко цитируются в мировой минералого-геохимической литературе.

С.В. Кривовичев впервые в мире синтезировал ряд уран-оксидных наноструктур – нанотубуленов на основе селенатов уранила. В связи с интересной структурой и свойствами полученных соединений, обсуждались перспективы их практического применения в виде нано-твэлов. С.В. Кривовичев установил строение полисоматических разновидностей муратаита, состоящее из кластеров-ячеек кристаллических структур пирохлора и, собственно, муратаита. Полученные результаты могут быть применены для выбора консервирующих матриц для обращения с радиоактивными отходами сложного состава.

С.В. Кривовичев ведёт активную научно-организационную деятельность. Возглавляя Кольский научный центр РАН – единственный федеральный исследовательский центр РАН, расположенный в Заполярье, он координирует деятельность десяти филиалов и институтов, с которыми ПО "Маяк" имеет непосредственный научно-производственный контакт.

Свою работу в ФИЦ КНЦ РАН С.В. Кривовичев совмещает с преподавательской деятельностью в Санкт-Петербургском государственном университете. С.В. Кривовичев как лектор неоднократно посещал Всероссийские молодёжные школы по ядерным технологиям, проводимые на Южном Урале силами ПО "Маяк". Им подготовлено 4 доктора и 15 кандидатов наук.

Научная деятельность С.В. Кривовичева отмечена крупными российскими и международными наградами: премией Президента РФ в области науки и технологий для молодых учёных 2008 года, золотой медалью с премией Алфёровского фонда поддержки образования и науки (2005), медалью с премией для молодых ученых РАН (1999), премией им. А.П. Карпинского за выдающиеся результаты в области геологии, геохимии и геофизических наук и горного дела Санкт-Петербургского научного центра РАН, медалью Европейского минералогического союза (2002), званием почётного лектора им. Дж. Брауна (2015) и медалью Шлюмберже Минералогического общества Британии и Ирландии (2019), почётным членством в Минералогическом обществе Америки (2006) и медалью Дж. Дэна Минералогического общества Америки (2021). С.В. Кривовичев – иностранный член Туринской академии наук (2016), почётный профессор Восточно-Китайского технологического университета (2016) и Мурманского государственного технического университета (2018). В честь С.В. Кривовичева назван новый минерал "кривовичевит".

С.В. Кривовичев – президент Международной минералогической ассоциации (ММА) (2014–2016), президент Российского минералогического общества (с 2021 г.), член Бюро ОН о Земле РАН.

Редакционная коллегия, читатели журнала "Вопросы радиационной безопасности" сердечно поздравляют Сергея Владимировича с Юбилеем и желают ему новых творческих достижений.

ПАМЯТИ СЕРГЕЯ ИВАНОВИЧА РОВНОГО



19 августа 2022 года скоропостижно скончался заслуженный ветеран ФГУП "ПО "Маяк", бывший начальник ЦЗЛ, кандидат химических наук, профессор – Сергей Иванович Ровный.

Сергей Иванович родился 14 марта 1953 г. в Челябинске-65 (ныне г. Озёрск). После окончания в 1976 г. Ленинградского технологического института им. Ленсовета он был направлен на химический комбинат "Маяк" в Центральную заводскую лабораторию. Первые годы работы С.И. Ровного были связаны с пуском и отработкой технологических процессов завода РТ-1. В пусковой период обкатки завода Сергей Иванович входил в состав комплексной бригады ЦЗЛ, где трудился под руководством выдающихся учёных отрасли, таких как доктора наук Б.С. Захаркин, Л.П. Сохина и др. Сергей Иванович занимался изучением процессов закладки ценных компонентов на всех этапах технологического передела с целью установления каналов потерь продукта. Изучал свойства экстракционных систем аффинажных отделений плутония и непутия. В 1986 г. С.И. Ровный защитил кандидатскую диссертацию, а в 1988 г., в связи с началом развития конверсионных направлений на ПО "Маяк", он возглавил группу, а затем и лабораторию по подготовке и становлению на комбинате производства кварцевого оптического волокна.

В 1995 г. С.И. Ровный был назначен начальником Центральной заводской лаборатории. Годы руководства ЦЗЛ проходили в очень сложное время: необходимо было не только сохранить научное сопровождение всех традиционных технологических процессов, но и развивать новые направления исследований. На этом посту Сергей Иванович поддерживал тесные научные контакты с ведущими научно-исследовательскими институтами Минатома, Академией наук и родственными предприятиями отрасли. Он являлся членом Межведомственного научно-технического совета Российской Академии наук и Минатома России по проблемам радиационной безопасности ФГУП "ПО "Маяк". Под его научным руководством и при его непосредственном участии решались вопросы научно-технического обеспечения радиохимического производства, совершенствования технологических схем химико-металлургического производства, особое внимание уделялось разработке технологий по сокращению и утилизации радиоактивных отходов, вопросам технологии дезактивации.

За годы научной деятельности С.И. Ровным было подготовлено свыше 100 научно-исследовательских отчётов, получено 10 патентов и авторских свидетельств на изобретения, опубликовано в открытых журналах и сборниках 60 статей и монографий по самому широкому кругу проблем ядерно-топливного цикла. С.И. Ровный является автором более 80 докладов, которые представлялись на отраслевых, общероссийских и международных научных и научно-практических конференциях. Сергей Иванович обладал не только прекрасным академическим образованием, широтой взглядов, умением выделять в поставленных задачах главное, но и блестящими организаторскими способностями и умением объединить людей для решения важнейших проблем.

Большое внимание С.И. Ровный уделял подготовке кадров для основного производства ФГУП "ПО "Маяк". Он являлся председателем совета по защите дипломных проектов в ОТИ НИЯУ МИФИ, членом Регионального Учёного совета по защите диссертаций. Под его руководством подготовлены четыре кандидата наук. По инициативе Сергея Ивановича на ПО "Маяк" организовано несколько Всероссийских школ молодых учёных и специалистов по радиохимии. Он является основателем и первым главным редактором нашего журнала "Вопросы радиационной безопасности".

В 1997 г. Сергею Ивановичу было присвоено звание "Ветеран труда", а в 2003 г. – "Ветеран атомной энергетики и промышленности".

Сергей Иванович был очень жизнерадостным, общительным и доброжелательным человеком, таким он и сохранился в сердцах и памяти всех тех, кто его знал.

ПАМЯТИ МАРИНЫ ОЛЕГОВНЫ ДЁГТЕВОЙ



Отечественная радиобиология и дозиметрия понесли тяжёлую утрату – 8 сентября 2022 г. ушла из жизни Марина Олеговна Дёгтева. Она родилась 11.10.1951 в г. Екатеринбурге, но детство и юность провела в Челябинске, где закончила 31-ю математическую школу. Учёба на физическом факультете МГУ им. М.В. Ломоносова (1969–1975 гг.) со специализацией в области биофизики снабдила её блестящим фактическим и методологическим багажом для самостоятельной научной деятельности. В 1976 г. она начала работать в филиале № 4 Института Биофизики МЗ СССР, г. Челябинск. С этого времени проблематика её работ касалась области радиационной биофизики, созвучной уральскому периоду исследований Н.В. Тимофеева-Ресовского, который в 1960-х гг. неоднократно приезжал в Челябинск для чтения лекций и участия в работе учёного совета ФИБ-4. Сам Тимофеев-Ресовский сформулировал научную проблему как "судьба излучателей, попадающих в различные участки биосферы". В мае 1990 г. она защитила канди-

датскую диссертацию, посвящённую моделированию метаболизма щелочноземельных элементов в организме человека. С 1991 г. и до последних дней она заведовала биофизической лабораторией Уральского научно-практического центра радиационной медицины (бывший ФИБ-4), которую создала с командой единомышленников.

Под руководством Марины Олеговны на Урале в 1990-х гг. были организованы дозиметрические исследования с использованием методов электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) и термолюминесценции (ТЛ). В течение многих лет проводился мониторинг содержания радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs в организме человека. Была разработана единая дозиметрическая система для реконструкции индивидуальных уровней облучения жителей радиоактивно загрязнённых территорий. Проводились исследования механизмов индикации радиационного воздействия и ретроспективной оценки доз при неравномерном внешнем и внутреннем облучении человека любого возраста. В 1995 г. она стояла у истоков проекта по дозиметрии в рамках Российско-Американского Соглашения по исследованию радиационных воздействий (JCCRER), этот проект под её руководством продолжался до 2022 года. В 2000–2015 гг. Марина Олеговна принимала участие в нескольких научных проектах под эгидой Европейского сообщества по атомной энергии (Euratom). В 2013–2017 гг. работала в Комитете 2-й Международной Комиссии по Радиологической защите (ICRP), о чём имеет памятный знак от этой организации. С 2016 г. включена в экспертный состав сессий Научного комитета ООН по действию атомной радиации (UNSCEAR). Итогом многолетней научной работы являются более 300 публикаций, включая 15 публикаций в нашем журнале. Индекс цитирования Марины Олеговны по версии Scopus составляет 27 – это самое большое значение у нас в стране в области дозиметрии. Наиболее важными наградами Марины Олеговны были: грамота Министерства Здравоохранения РФ (2007); почётный знак Общества Физики здоровья США (Health Physics Society, 2010); медаль Государственной корпорации Росатом "75 лет атомной отрасли России" (2021).

Учёные из разных стран с удовольствием работали с Мариной Олеговной, отмечая её высочайший профессионализм, доброжелательность и уважение к коллегам. Как отметил один из её соратников – профессор Линн Анспо: "Марина была особенным человеком и учителем для многих из нас". Она подготовила четырёх кандидатов наук. Молодёжь неизменно получала от неё и научные советы, и помощь в реализации своих идей.

Светлая память о Марине Олеговне навсегда сохранится в сердцах научных сотрудников института, коллег и друзей.

RADIATION SAFETY PROBLEMS

Scientific Journal

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

№ 3 (107) 2022

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

EDITORIAL ADVISORY COMMITTEE

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

CONTENTS

1. RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT

- K.A. Feoktistov, V.A. Remizova, P.A. Bobrov, O.M. Slyunchev.** Development of Methods for Treatment of Liquid Intermediate-Level Waste of the Radiochemical Plant 3
- P.A. Bobrov, O.M. Slyunchev, N.V. Silich, N.P. Starovoytov.** Results of Pilot-Scale Tests Focused on Oxidation of Organic Compounds in Radioactive Suspensions 12
- V.V. Milyutin, N.A. Nekrasova, P.V. Kozlov, D.V. Markova, K.A. Feoktistov.** Recovery of Cesium from Model Solutions of High-Level Alkaline Wastes Using an Inorganic Ferrocyanide Sorbent of Fersal Brand 20

2. RADIOACTIVE WASTE & ENVIRONMENT

- Yu.G. Mokrov, K.Yu. Mokrov, P.A. Kizub, P.A. Blokhin, V.M. Soshnikov.** Characterization of Gamma-Ray Source-Term in the Vicinity of Metlinsky Pond at the Techa River. Part 1. Statement of the Problem and Preliminary Variant Calculations 28
- P.A. Andronnikov.** Decommissioning of Nuclear- and Radiation-Hazardous Facilities and Remediation of Contaminated Territories at FSUE Mayak PA from 2016 to 2021 42

3. RADIOCHEMICAL TECHNIQUES OF SNF REPROCESSING

- Ye.V. Lyzlova, A.V. Glukhova, A.V. Konnikov, M.A. Biryukova.** Uranium Sorption Extraction from Nitric Acid Regeneration Solutions Using Purolite® Cation Exchangers 53

CONTENTS

N.P. Starovoytov, S.A. Lukin, S.V. Korenev, V.A. Kazakov, V.A. Dudkin, P.V. Kozlov, P.A. Bobrov. Development of a Procedure for Investigation of Thermophysical Characteristics of Powdered Materials Using DSC Method	60
---	----

4. RADIATION EXPOSURE & HUMAN HEALTH

Ya.V. Krivoshchapova, A.V. Vozilova. The Study of the Telomere Length of the Chromosomes in T-Lymphocytes of the Exposed Individuals	71
G.V. Zhuntova, T.V. Azizova, Ye.S. Grigoryeva, T.P. Zavarukhina, Ye.P. Fomin. Stomach Cancer Incidence Rates in a Cohort of Workers Employed at a Nuclear Production Facility	80

5. INFORMATION & PERSONALIA

The 50th Anniversary of Sergey Vladimirovich Krivovichev	88
<div style="border: 1px solid black; padding: 2px;">S.I. Rovny</div>	89

<div style="border: 1px solid black; padding: 2px;">M.O. Degteva</div>	90
--	----

CONTENTS	91
-----------------	-----------

ABSTRACTS	93
------------------	-----------

Information about Authors	97
----------------------------------	-----------

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

DEVELOPMENT OF METHODS FOR TREATMENT OF LIQUID INTERMEDIATE-LEVEL WASTE OF THE RADIOCHEMICAL PLANT

K.A. Feoktistov, V.A. Remizova, P.A. Bobrov, O.M. Slyunchev
FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia

The tests focused on treatment of real liquid intermediate-level waste using precipitation and sorption methods were carried out. Dependence of degree of the solution purification from α - and β -emitting nuclides on iron (II) dosage and MnO_2 concentration was experimentally determined and dependence of the degree of the solution purification from cesium radionuclides on $\text{Ni}_2\text{Fe}(\text{CN})_6$ concentration was established. Sorption purification was performed using AV-17 and VP-1AP anion exchangers under static conditions.

It has been established that removal of carbonate ions from soda washing solutions improves efficiency of purification from α - and β -emitting nuclides.

It has been demonstrated that the combination of these methods allows decreasing activity of α -emitting nuclides by one to three orders of magnitude to the level of 10^3 Bq/dm^3 and activity of ^{137}Cs by one or two orders of magnitude due to precipitation on nickel ferrocyanide.

KEYWORDS: LIQUID RADIOACTIVE WASTE, COPRECIPITATION, IRON (III) HYDROXIDE, MANGANESE DIOXIDE, NICKEL FERROCYANIDE, SORPTION, RUTHENIUM

RESULTS OF PILOT-SCALE TESTS FOCUSED ON OXIDATION OF ORGANIC COMPOUNDS IN RADIOACTIVE SUSPENSIONS

P.A. Bobrov, O.M. Slyunchev, N.V. Silich, N.P. Starovoytov
FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia

The paper describes findings of the pilot-scale testing of the process of oxidation and subsequent drying of the suspension from the facility for microfiltration purification of liquid low-level waste of the chemical-metallurgical plant at the Mayak PA. During testing, 16.5 m^3 of radioactive suspension has been reprocessed, from which 5.5 m^3 of sludge has been produced.

Composition of the gaseous phase at oxidation has been established. Comparative thermogravimetric investigations of unoxidized and oxidized suspensions have been carried out. It has been demonstrated that the use of hydrogen peroxide in combination with iron sulfate does not produce significant effect on explosion-and-fire safety of the waste treatment process. The findings of the study can be of use for development of the process for treatment of radioactive suspensions containing organic substances.

KEYWORDS: LIQUID RADIOACTIVE WASTE, OXIDATION, SUSPENSION, FENTON'S REAGENT, EXPLOSION-AND-FIRE SAFETY

RECOVERY OF CESIUM FROM MODEL SOLUTIONS OF HIGH-LEVEL ALKALINE WASTES USING AN INORGANIC FERROCYANIDE SORBENT OF FERSAL BRAND

V.V. Milyutin, N.A. Nekrasova
FSBIS A.N. Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry of the Russian Academy of Sciences (IPCE RAS), Moscow, Russia
D.V. Markova, P.V. Kozlov, K.A. Feoktistov
FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia

The paper presents the results of a study in which a sorption procedure was used as a method of cesium extraction from a model solution simulating the clarified phase of high-level alkaline waste stored in waste

storage tanks of the Mayak facility. The study used a new inorganic sorbent of the Russian brand (Fersal) based on modified nickel ferrocyanide under static and dynamic conditions. The paper demonstrates that the Fersal sorbent outperforms a resorcinol-formaldehyde cation-exchange resin (of the Axionit RCs brand) and an inorganic sorbent (of the foreign Clevasol brand) in terms of the main sorption parameters – cesium distribution coefficient and static and dynamic capacity. When the sorption of cesium is carried out under dynamic conditions, the resource of the Fersal sorbent (till 1 % breakthrough is registered) makes 88 bed volumes with the maximum purification coefficient reaching 3,400. The dynamic capacity of the sorbent for cesium was 13.6 mg/cm³. Cesium can be desorbed from the Fersal sorbent using a solution of 8.0 mol/dm³ HNO₃ (the degree of cesium desorption is about 70 %). In the process of desorption, partial degradation of the sorbent is observed. The paper concludes that the Fersal sorbent can be a promising material for purification of the clarified phase (stored in the Mayak waste storage tanks) from cesium radionuclides.

KEYWORDS: HIGH-LEVEL WASTE, STORAGE TANKS, SORPTION, DESORPTION, CESIUM, INORGANIC SORBENT, STATIC CONDITIONS, DYNAMIC CONDITIONS

CHARACTERIZATION OF GAMMA-RAY SOURCE-TERM IN THE VICINITY OF METLINSKY POND AT THE TECHA RIVER. PART 1. STATEMENT OF THE PROBLEM AND PRELIMINARY VARIANT CALCULATIONS

Yu.G. Mokrov, K.Yu. Mokrov

FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia

P.A. Blokhin, V.M. Soshnikov, P.A. Kizub

Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

Study of radiation risks for the population that inhabited the Techa riverside area from 1949 to 1956 is of fundamental importance for radiation hygiene as members of this cohort are considered to have been subject to prolonged radiation exposure at low dose rates. Special emphasis in this study is made on the analysis of the external accumulated dose of the residents of Metlino Settlement that used to be located on the shores of Metlinsky Pond at a distance of 7 km from the site where liquid radioactive waste was discharged into the river. From 2007 to 2021, integrated computational and experimental studies were performed with the use of thermoluminescent dosimetry (TLD) with the aim of evaluating the accumulated dose in bricks of the old granary preserved on the shore of Metlinsky Pond. An unexpected finding of these studies is a similar 2.2-fold increase of the present-day dose rate and accumulated dose (1949–2007) with increasing height of the building. To explain this phenomenon the authors of the paper assumed that the main source of γ -radiation, at present and in the past, is located at a depth of 10 to 30 cm from the dike surface at a distance of no more than 20 m from the building. But such geometry of the source of γ -radiation contradicts the results of measurements of depth distribution of accumulated dose in bricks. Uncertainty of spatial distributions of the source of γ -radiation in the vicinity of Metlinsky Pond, existing in the past and observed at present, prevents from obtaining reliable estimates of the accumulated dose for the population. Operating conditions of Metlinsky Pond implied periodic water discharge needed to set in motion a water mill, as a result of which some bottom sediments were no longer covered with water and the dose rate grew on the shores. The paper presents the results of variant calculations carried out using the Monte Carlo method, which provided spatial distributions of the dose rate for various locations of a point source of γ -radiation on the dried out bottom surface and shoreline of Metlinsky Pond taking into account barrier geometry. Possible geometries of the γ -radiation source that make it possible to explain all known experimental distributions of present-day dose rates (portable dosimeter) and accumulated doses (TLD method) near the granary in Metlino Settlement were identified. The obtained results make it possible to provide more correct estimates of accumulated doses for the residents of Metlino Settlement.

KEYWORDS: TECHA RIVER COHORT, METLINSKY POND, RETROSPECTIVE DOSIMETRY

OF EXTERNAL DOSES, MONTE-CARLO SIMULATION, CALCULATION OF RADIATION PROPAGATION, BOTTOM SEDIMENTS

DECOMMISSIONING OF NUCLEAR- AND RADIATION-HAZARDOUS FACILITIES AND REMEDIATION OF CONTAMINATED TERRITORIES AT FSUE MAYAK PA FROM 2016 TO 2021

P.A. Andronnikov
FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia

The paper summarizes the Mayak PA activities in the field of decommissioning of nuclear- and radiation-hazardous facilities and remediation of contaminated territories. It describes the scope of activities performed during the preliminary stage of decommissioning (implementation of integrated engineering and radiation surveys, development of design and estimate documentation), demolition of buildings and constructions of the main Mayak plants and remediation of contaminated territories of the radiochemical plant. It is worth noting that calculated and actual quantitative parameters of the radioactive waste generated as a result of demolition works are in agreement with each other.

KEYWORDS: DECOMMISSIONING, REMEDIATION OF CONTAMINATED TERRITORIES, RADIOACTIVE WASTE, BUILDINGS AND CONSTRUCTIONS, RADIOCHEMICAL PLANT, REACTOR PLANT, CHEMICAL-METALLURGICAL PLANT, NUCLEAR- AND RADIATION-HAZARDOUS FACILITIES, INTEGRATED ENGINEERING AND RADIATION SURVEY, REMEDIATION OF CONTAMINATED TERRITORIES, DESIGN AND ESTIMATE DOCUMENTATION

URANIUM SORPTION EXTRACTION FROM NITRIC ACID REGENERATION SOLUTIONS USING PUROLITE® CATION EXCHANGERS

Ye.V. Lyzlova, A.V. Glukhova, A.V. Konnikov, M.A. Biryukova
FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia

Sorption features of Purolite® cation exchange resins were studied with respect to uranium in nitric acid solutions. Coefficients of uranium distribution on cation exchange resins depending on the acidity of the solution, kinetic parameters of uranium sorption and exchange capacity of cation exchangers were determined. Uranium sorption and desorption dynamics was studied using simulated and regeneration solutions. It has been demonstrated that carbonaceous resins Purolite® C 104 FL, Purolite® C 106 and Purolite® C 115 are advanced materials in terms of uranium recovery from nitric acid regeneration solutions.

KEYWORDS: URANIUM, CATION-EXCHANGE RESINS, SORPTION, DESORPTION, NITRIC ACID REGENERATION SOLUTIONS, EXCHANGE CAPACITY, DISTRIBUTION COEFFICIENTS

DEVELOPMENT OF A PROCEDURE FOR INVESTIGATION OF THERMOPHYSICAL CHARACTERISTICS OF POWDERED MATERIALS USING DSC METHOD

N.P. Starovoytov, S.A. Lukin, S.V. Korenev, V.A. Kazakov, V.A. Dudkin, P.V. Kozlov, P.A. Bobrov
FSUE Mayak PA, Ozyorsk, Russia

By means of modifying the previously known procedure for measuring the thermal conductivity of solid, composite materials using differential scanning calorimetry, a new procedure for experimental study of thermophysical characteristics of powdered materials was proposed and tested using U_3O_8 as an example. The advantage of this measurement procedure for the study of active powders was shown. For powdered materials of various substances, the relationship between a thermal conductivity coefficient and temperature was determined. Applicability of this method was proved when working with real active samples of powdered materials, for analysis of their thermophysical properties and, in the future, for evaluation of safe

handling and storage parameters. Joint processing of the results of thermography of reference samples and powdered materials using the example of U_3O_8 with a density of 6.326 g/cm^3 made it possible, with an error of no more than 1 %, to find the thermal conductivity coefficients of the latter: $\lambda(T, K) = 0.197 (429.75)$; $0.210 (505.05)$; $0.225 (692.65) \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ at melting temperatures of indium, zinc and tin samples, respectively.

KEYWORDS: POWDERED MATERIALS, TRIURANIUM OCTOXIDE, SAFE STORAGE, THERMAL CONDUCTIVITY, METAL MELTING, HEAT FLOW, DIFFERENTIAL SCANNING CALORIMETRY

THE STUDY OF THE TELOMERE LENGTH OF THE CHROMOSOMES IN T-LYMPHOCYTES OF THE EXPOSED INDIVIDUALS

Ya.V. Krivoschapova, A.V. Vozilova

FSBIS Urals Research Center for Radiation Medicine of FMBA of Russia, Chelyabinsk, Russia

It is known that the telomere length of chromosomes in people shortens with age. Different factors may affect this process. The potential influence of ionizing radiation could not be excluded either. The objective of the paper was to study the effects of chronic human radiation exposure, age and sex on the telomere length of the chromosomes. Fluorescent staining method (Q-FISH) with telomere probes together with DAPI counter-staining allows measuring the length of telomeres in every metaphase chromosome. The object of the study was FHA-stimulated T-cells of the peripheral blood collected from the residents of the Techa riverside settlements who were affected by a combined chronic exposure. The length of the telomeres of the 1st, 2nd, 3rd, 13th, 14th, 15th, 16th, 21st and 22nd chromosome pairs was measured. Based on the results of the conducted study we have come to the following conclusions: the length of the telomeres varies greatly within one cell; the length of the telomeres does not correlate with the length of the chromosome or the chromosome arm. The value of the telomere length is statistically significantly high in all arms in men. In the group of exposed individuals the telomeres in acrocentric chromosomes are statistically significantly longer in the arms 14p and 22p relative to those in the comparison group.

KEYWORDS: TECHA RIVER COHORT, TECHA RIVER IN UTERO EXPOSED COHORT, TELOMERES OF THE CHROMOSOMES, CHRONIC RADIATION EXPOSURE, FLUORESCENT IN SITU HYBRIDIZATION, FISH

STOMACH CANCER INCIDENCE RATES IN A COHORT OF WORKERS EMPLOYED AT A NUCLEAR PRODUCTION FACILITY

G.V. Zhuntova, T.V. Azizova, Ye.S. Grigoryeva

Southern Urals Biophysics Institute of FMBA of Russia, Ozyorsk, Russia

T.P. Zavarukhina, Ye.P. Fomin

Clinical Hospital No. 71 of FMBA of Russia, Ozyorsk, Russia

Stomach cancer (SC) holds one of the leading positions in cancer incidence and mortality patterns. Data on ionizing radiation effect on SC occurrence are inconsistent.

Incidence rates for SC were estimated for a cohort of workers occupationally exposed to external gamma rays and internal alpha radiation due to incorporated plutonium over a prolonged period.

Age- and sex-standardized SC incidence rates were found to be increased, and the increase was associated with occupational external gamma-ray exposure at doses exceeding 0.2 Gy absorbed in stomach walls. Internal alpha-radiation exposure was found to have no effect on SC incidence rates in the study cohort.

SC incidence rates for both the study cohort and the general population were associated with non-radiation risk factors, such as attained age, sex, calendar period of follow-up, smoking status and index, alcohol consumption and peptic ulcer comorbidity.

KEYWORDS: STOMACH CANCER, EXPOSURE TO EXTERNAL GAMMA RADIATION, INTERNAL ALPHA-RADIATION EXPOSURE, SMOKING, ALCOHOL, PEPTIC ULCER

Главный редактор

Мокров Юрий Геннадьевич — доктор технических наук

Заместитель главного редактора

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

Редакционная коллегия:

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

Сведения об авторах статей:

- | | |
|----------------------------------|--|
| Азизова Тамара Васильевна | – к.мед.н., зам. директора по науке, зав. клиническим отделом,
<i>clinic@subi.su</i> |
| Андронников Павел Александрович | – начальник отдела экологии, т. (35130) 33715 |
| Бирюкова Марина Аркадьевна | – инженер-радиохимик аналитической лаборатории ЦЗЛ,
т. (35130) 37053, <i>cpl@po-mayak.ru</i> |
| Блохин Павел Анатольевич | – к.т.н., научный сотрудник, т. (495) 9552335, <i>blokhin@ibrae.ac.ru</i> |
| Бобров Павел Александрович | – инженер-технолог лаборатории по обращению и
кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 37515,
<i>cpl@po-mayak.ru</i> |
| Возилова Александра Владимировна | – к.б.н., заведующий лабораторией радиационной генетики,
т. (351) 2327914, <i>vozilova@urcrm.ru</i> |
| Глухова Анастасия Валентиновна | – инженер-технолог технологической лаборатории ЦЗЛ,
т. (35130) 37187, <i>cpl@po-mayak.ru</i> |
| Григорьева Евгения Сергеевна | – научный сотрудник, <i>clinic@subi.su</i> |
| Дудкин Владимир Алексеевич | – инженер-технолог лаборатории по обращению и
кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 33348,
<i>cpl@po-mayak.ru</i> |
| Жунтова Галина Вадимовна | – к.мед.н., ведущий научный сотрудник, т. (35130) 29541,
<i>clinic@subi.su</i> |
| Заварухина Татьяна Павловна | – врач-терапевт |
| Казаков Виталий Анатольевич | – инженер-технолог лаборатории по обращению и
кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 33348,
<i>cpl@po-mayak.ru</i> |
| Кизуб Полина Александровна | – младший научный сотрудник, т. (495) 9552335, <i>kizub@ibrae.ac.ru</i> |
| Козлов Павел Васильевич | – к.т.н., доцент, начальник исследовательской лаборатории (по
обращению и кондиционированию радиоактивных отходов) ЦЗЛ,
т. (35130) 33269, <i>cpl@po-mayak.ru</i> |
| Конников Андрей Валерьевич | – к.т.н., начальник исследовательской лаборатории (технологической)
ЦЗЛ, т. (35130) 37381, <i>cpl@po-mayak.ru</i> |
| Коренев Станислав Вениаминович | – инженер-физик лаборатории по обращению и кондиционированию
радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 33685, <i>cpl@po-mayak.ru</i> |

Кривошапова Яна Владимировна	— младший научный сотрудник лаборатории радиационной генетики, т. (351) 2327914, <i>yana@urcrm.ru</i>
Лукин Сергей Александрович	— заместитель начальника ЦЗЛ по науке и технологии, т. (35130) 33992, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Лызлова Евгения Викторовна	— к.т.н., начальник группы технологической лаборатории ЦЗЛ, т. (35130) 37187, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Маркова Дарья Владимировна	— инженер-технолог лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 33782, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Милютин Виталий Витальевич	— д.хим.н., заведующий лабораторией, т. (495) 3359288, <i>vmilyutin@mail.ru</i>
Мокров Кирилл Юрьевич	— начальник группы лаборатории экологической безопасности и охраны окружающей среды ЦЗЛ, т. (35130) 37154, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Мокров Юрий Геннадьевич	— д.т.н., советник генерального директора по науке и экологии, т. (35130) 33304, <i>mokrov@po-mayak.ru</i>
Некрасова Наталья Анатольевна	— к.х.н., старший научный сотрудник, т. (495) 3359288, <i>nnekrassova@gmail.com</i>
Ремизова Валерия Александровна	— инженер-технолог лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 30600, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Силич Наталья Владимировна	— начальник участка цеха 1 завода 20, т. (35130) 36939
Слюнчев Олег Михайлович	— к.т.н., главный эксперт Филиал АО «Концерн Росэнергоатом»
Сошников Владислав Максимович	— техник, т. (495) 9552335, <i>soshnikov@ibrae.ac.ru</i>
Старовойтов Николай Петрович	— начальник группы лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 37388, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Феоктистов Кирилл Алексеевич	— инженер-технолог лаборатории по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов ЦЗЛ, т. (35130) 37515, <i>cpl@po-mayak.ru</i>
Фомин Евгений Павлович	— д.мед.н., начальник

НАУЧНО-ПРАКТИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ
Федерального государственного унитарного предприятия
"ПРОИЗВОДСТВЕННОЕ ОБЪЕДИНЕНИЕ "МАЯК"
ВОПРОСЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ
№ 3 (107) 2022

Технический редактор И.Н. Моисеева

Переводчики: О.А. Константинова, Е.В. Лупеха, Д.Ю. Сезонова

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

ПОДПИСКА – 2022

**С октября 2022 г. на сайте "Почта России" проводится
подписная кампания на январь - июнь 2023 года
по электронному каталогу.**

ЖУРНАЛ

"Вопросы радиационной безопасности"

основной индекс ПН083.

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

Подписано в печать 30.09.2022

Выход в свет 07.10.2022

Тираж 70 экз.

Цена договорная

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