

УДК 621.039
© 2008

**ВОССТАНОВЛЕНИЕ ПАРАМЕТРОВ ИСТОЧНИКА СБРОСОВ ЖИДКИХ
РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ РАДИОХИМИЧЕСКОГО ПРОИЗВОДСТВА
В Р. ТЕЧА. СООБЩЕНИЕ 1. РАЗРАБОТКА МЕТОДИКИ И
ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ**

*Ю.В. Глаголенко, Е.Г. Дрожко, Ю.Г. Мокров, С.И. Ровный,
П.М. Стукалов, И.А. Иванов, А.И. Алексахин
Россия, г. Озерск, ФГУП "ПО "Маяк"
М.И. Воробьева, М.О. Дегтева, А.В. Аклеев
Россия, г. Челябинск, ФГУН УНПЦ РМ*

Приведены результаты восстановления радионуклидного состава и активности для 24 основных радионуклидов осколочного происхождения, поступавших с регламентными (проектными) и нерегламентными (аварийными) сбросами жидких радиоактивных отходов (ЖРО) радиохимического производства в р. Теча в период с 1949 по 1951 гг., когда контроль за сбросами отсутствовал. Восстановление выполнено с использованием полученных ранее результатов реконструкции радионуклидного состава осколков деления, накапливающихся в облученном уране, поступавшем на переработку на радиохимический завод "Б", и обобщенных архивных данных о параметрах различных типов ЖРО (удельная активность, объем отходов, "радиохимический" состав), образывавшихся на заводе "Б" в начале 1950-х гг. Учитывались особенности радиохимических методов выделения и радиометрических методов измерения удельной активности ЖРО, использовавшихся в тот период времени.

Согласно предварительным оценкам, суммарный сброс активности в р. Теча (1949–1951 гг.) составил примерно 4,9 млн. Ки (2,9 млн. Ки – регламентные сбросы и не менее 2,0 млн. Ки – аварийные). С регламентными ЖРО в р. Теча поступили практически все короткоживущие нуклиды (^{131}I , ^{140}Ba , ^{147}Nd , ^{133}Pm) и основная часть (60–80 %) радионуклидов со средним периодом полураспада (^{93}Zr , ^{90}Sr , ^{144}Ce и др.). Основная часть долгоживущих продуктов деления (^{90}Sr , ^{137}Cs) (~70 %) поступила в воды р. Теча с аварийными сбросами в октябре 1951 г.

В 1949–1956 гг., в период выполнения Государственной оборонной программы, ПО "Маяк" производило регламентные (предусмотренные техническим проектом) и аварийные сбросы жидких радиоактивных отходов (ЖРО) в р. Теча, причем, основная часть активности (более 99 %) поступила в воды реки до ноября 1951 г. В состав ЖРО входили радионуклиды осколочного происхождения с периодом полураспада от нескольких суток до десятков лет. В результате, крупномасштабному радиоактивному загрязнению подверглись все компоненты р. Теча (вода, донные отложения, пойма, рас-

тительность, биота), а жители прибрежных населенных пунктов подверглись значительному радиационному воздействию.

Сбросы ЖРО перед поступлением в открытую гидрографическую систему р. Теча сначала направлялись в проточный водоем-отстойник В-3 (Кокшаровский пруд), построенный в августе 1951 г., а затем – в проточный водоем В-4 (Метлинский пруд), построенный еще в XIX веке.

По своим масштабам и последствиям радиационная ситуация на р. Теча не имеет прецедентов и является одной из наиболее значимых

за всю историю атомной эры. К сожалению, вследствие целого ряда объективных и субъективных причин, многие аспекты этой аварийной ситуации остаются неизвестными до сих пор. Все существовавшие до настоящего времени представления о параметрах радиоактивного загрязнения реки основываются на информации, полученной специалистами ПО "Маяк" в середине 1950-х гг. [1]. Непосредственное использование этой информации для целей радиационной дозиметрии населения приводило к значительным неопределенностям по следующим причинам:

– первые данные о параметрах радиоактивного загрязнения реки были получены летом 1951 г., а регулярный радиационный контроль был организован только в октябре 1951 г. Отсутствие данных радиационного контроля за период с 1949 по октябрь 1951 гг. является одной из главных причин имеющихся неопределенностей;

– сохранившиеся в архивах результаты измерений радиоактивного загрязнения компонентов речной системы должны быть верифицированы, поскольку существовавшие в тот период времени радиометрические, радиохимические и радиационные методы и средства проведения измерений были несовершенны и содержали ряд специфических особенностей, затрудняющих интерпретацию полученных результатов;

– в 1950-х гг. отсутствовали знания о гидрохимических и сорбционных свойствах различных радионуклидов, о формах их существования в природных водных системах и о механизмах переноса радионуклидов с речными водами, а значения многих ядерно-физических и гидрохимических характеристик радиоактивных нуклидов в тот период времени были неизвестны или содержали большие неопределенности.

Поэтому, полученные в 1950-х гг. интегральные расчетные оценки радионуклидного состава сбрасываемых ЖРО и общего радиоактивного стока (сброса) требуют критического пересмотра (методики проведения таких расчетных оценок в архивах отсутствуют).

Получение объективных и достоверных данных о параметрах источника сбросов радиоактивных отходов р. Теча в период до

октября 1951 г. (когда радиационный контроль отсутствовал) является необходимым условием корректной оценки накопленной, текущей и прогнозируемой дозы облучения и, в конечном итоге, радиационных рисков для населения.

Основной задачей исследований, выполненных в рамках проекта МНТЦ № 2841, является реконструкция параметров источника сбросов ЖРО в р. Теча в период с 1949 по 1951 гг.

В данной работе содержится краткий анализ полученной ранее информации о режимах и параметрах сбрасываемых в р. Теча отходов радиохимического производства и приведены предварительные результаты реконструкции параметров источника сбросов ЖРО в р. Теча, полученных в ходе выполнения работ по проекту МНТЦ № 2841 [2].

1. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

ПО "Маяк" использовало р. Теча для сброса регламентных и аварийных ЖРО радиохимического производства в период с 1949 по 1956 гг., когда было завершено строительство непероточного водоема В-10.

В нижнем бьефе плотины П-2 (300 м ниже), находившейся в восточной части оз. Кызылташ (водоем В-2), было построено выпускное сооружение для слива сточных радиоактивных вод (рис. 1). Для разбавления сбросов, из оз. Кызылташ через плотину П-2 в р. Теча сбрасывалась относительно чистая озерная вода. Вместе с водой в р. Теча поступали природные взвешенные вещества (в основном в виде частиц глины). Содержание взвешенных веществ в воде водоемов В-3 и В-4 достигало 200–300 мг/л в результате эксплуатации рефулера. Рефулер использовался для добычи песка для нужд строительства. Добыча песка осуществлялась методом гидронамыва из карьера расположенного на берегу водоема В-2 в 300–500 м южнее плотины П-2 (рис. 1). Потоки циркулирующей в водоеме В-2 воды подхватывали сбросы рефулера и доставляли взвешенные вещества в район плотины П-2, откуда взвеси поступали в воды р. Теча. Добыча песка из карьера в районе водоема В-2 была прекращена в конце 1952 – начале 1953 гг.

Со сбросами ЖРО в воды р. Теча поступали нерастворимые в воде осадки солей в виде мелкодисперсной, труднорастворимой мути.

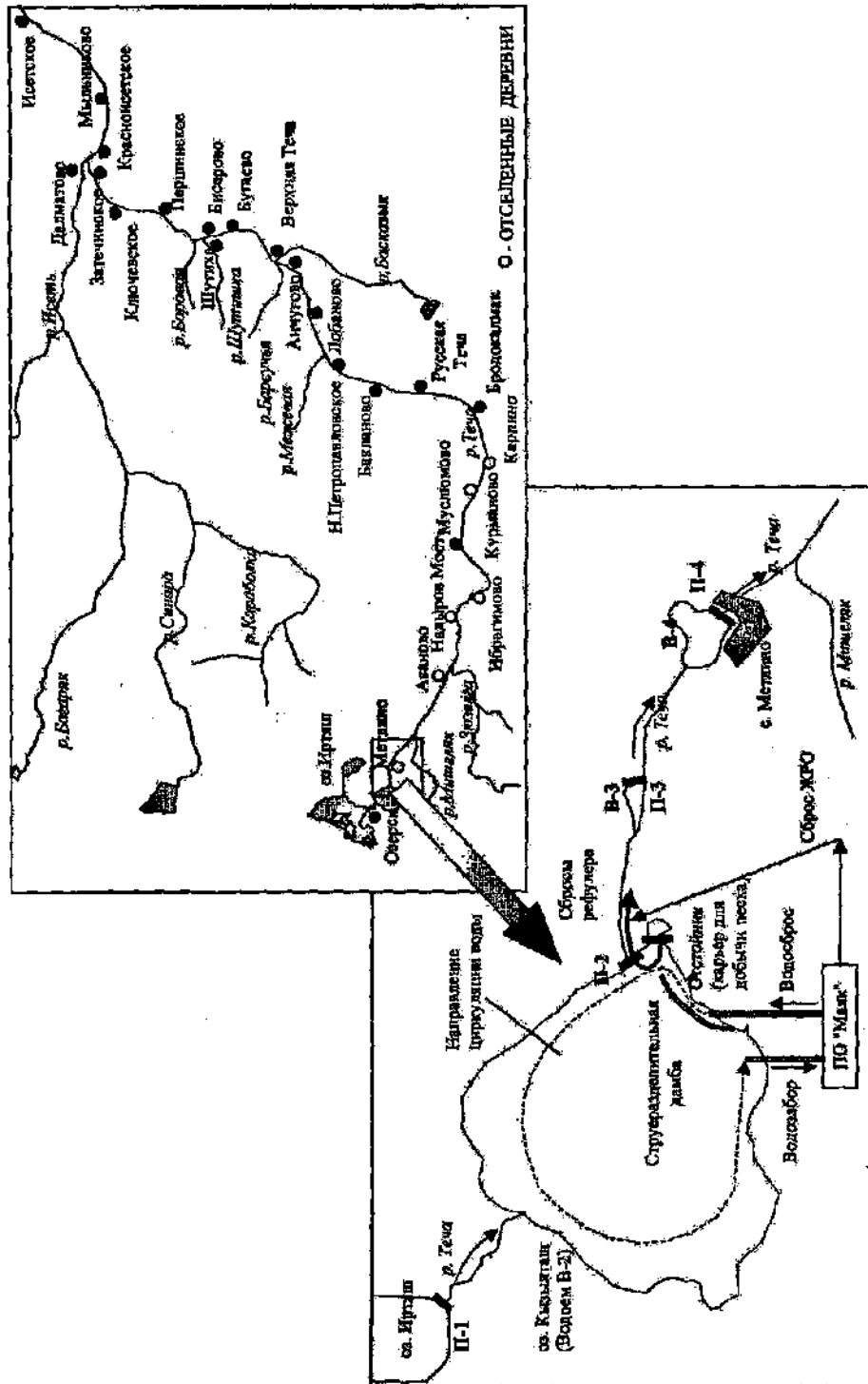


Рис. 1. Карта-схема речной системы р. Теча

Со взвесями поступало ~70 % сбрасываемой активности [1]. Этот источник поступления техногенных взвесей в р. Теча прекратил свое существование 28 октября 1951 г., когда основная часть технологических отходов была направлена на сброс в водоем Карачай [1].

Сброс в р. Теча ЖРО, образующихся в процессе нормальной (штатной) эксплуатации радиохимического завода, изначально предусматривался техническим проектом. Такие сбросы принято называть регламентными (рис. 2).

Все регламентные жидкие сбросы радиохимического производства можно условно разбить на технологические и нетехнологические. К технологическим сбросам, получаемым систематически в определенных количествах в технологическом процессе, было принято относить щелочные декантаты, алюминатные воды, марганцевые пульпы и др., а к нетехнологическим – конденсат большой трубы, конденсаты пара, получаемые при обогревах аппаратов, охлаждающие воды, воды от десорбции аппаратуры и каньонов, воды лаборатории, прачечной, санпропускника и т.п.

Помимо регламентных сбросов в реку Теча периодически попадали непредусмотренные технологическим процессом несанкционированные (“аварийные”) сбросы.

Несанкционированные сбросы имели место в тех случаях, когда дренажными или охлаждающими водами захватывались радиоактивные продукты из емкостей-хранилищ высокоактивных отходов (ВАО) в результате коррозионного разрушения охлаждающей системы.

До июня 1951 г. систематический контроль за радиоактивным загрязнением р. Теча не проводился. Первые сведения об уровнях и масштабах радиоактивного загрязнения рек Теча, Исеть и Тобол были получены летом 1951 г. в результате комплексных исследований, выполненных специалистами службы внешней дозиметрии ПО “Маяк”.

С октября 1951 г. на ПО “Маяк” вводится регулярный штатный контроль за радиоактивным загрязнением компонентов речной системы р. Теча. Этот контроль ведется на ПО “Маяк” непрерывно и по сей день.

В данной работе использована следующая схема – последовательность выполнения исследований по реконструкции параметров источника сброса ЖРО в р. Теча:

1. На первом (предварительном) этапе была выполнена реконструкция радионуклидного состава осколков деления, накапливающихся в уране на момент окончания его облучения в реакторе. Реконструкция выполняется на



Рис. 2. Обобщенная схема образования жидких радиоактивных отходов, поступающих на сброс в р. Теча

основе специально разработанной реакторной модели с использованием архивных данных о *помесячной выгрузке (и загрузке) урана* в каждый реактор.

Реконструкции подлежали:

- последовательность перегрузки урана в зависимости от радиуса его расположения в активной зоне;
- продолжительность облучения урана в каждом радиусе;
- радионуклидный состав осколков деления для каждого радиуса;
- усредненный радионуклидный состав извлеченного из реактора урана за каждый месяц.

2. На втором предварительном этапе была выполнена работа по реконструкции радионуклидного состава осколков деления в облученном уране на момент передачи урана из бассейна выдержки реактора на радиохимический завод. Реконструкция проведена на основе имеющихся архивных данных о ежемесячных поставках облученного урана на радиохимическую переработку с использованием специально разработанных моделей хранения урана в бассейне выдержки каждого реактора.

Реконструкции подлежали:

- последовательность извлечения урана из бассейна выдержки;
- эффективное время хранения урана в бассейне;
- усредненный радионуклидный состав осколков деления в облученном уране, поступающем на радиохимическую переработку за каждый месяц.

Подробная информация о результатах исследований, полученных на первых двух предварительных этапах, приведена в работах [2, 3].

3. В данной работе (см. раздел 2) приводятся результаты реконструкции параметров регламентных ЖРО, сбрасываемых с радиохимического завода в р. Теча. Реконструкция выполнена с использованием информации, полученной на первых двух предварительных этапах исследований, и данных о массе перерабатываемого урана за каждый месяц, на основе обобщения результатов архивных данных о параметрах различных типов ЖРО, образующихся при эксплуатации завода "Б" в январе 1952 г.

В этот период времени на предприятии были выполнены широкомасштабные исследования по изучению параметров образующихся ЖРО, и полученные данные обладают наибольшей полнотой и достоверностью.

Реконструкции подлежат:

- параметры радиохимического (по группам) состава регламентных ЖРО;
- *помесячный регламентный сброс активности* всех бета-излучающих осколков деления (с учетом существовавших в 1950-х гг. особенностей регистрации бета-излучающих нуклидов на торцевом счетчике);
- *помесячный и суммарный (1948-1951 гг.) сброс ^{90}Sr* в составе регламентных ЖРО.

4. В разделе 3 данной работы приводятся результаты реконструкции радионуклидного состава и активности зарегистрированных аварийных (нерегламентных) сбросов.

2. РЕКОНСТРУКЦИЯ РАДИОНУКЛИДНОГО СОСТАВА И АКТИВНОСТИ РАДИОНУКЛИДОВ, ПОСТУПАВШИХ В Р. ТЕЧА С РЕГЛАМЕНТНЫМИ СБРОСАМИ В ПЕРИОД С 1949 ПО 1951 гг.

Реконструкцию параметров регламентных (технологических и нетехнологических) сбросов ЖРО в р. Теча будем проводить с использованием следующей информации:

- *помесячных результатов реконструкции радионуклидного состава осколков деления, накапливающихся в облученном уране на момент передачи его из бассейнов выдержки реакторов на радиохимический завод "Б"* [2, 3];

- *помесячных архивных данных о массе урана, поступающей из реакторов "А" и "АВ-1" на радиохимическую переработку;*

- *экспериментальных данных об удельной активности и о радиохимическом составе осколков деления, содержащихся в различных типах регламентных ЖРО. Эта информация за период с 1951 по 1952 гг. получена по архивным данным, обобщена в отчетах по проекту [2, 4] и в результирующем виде представлена в табл. 1, 2.*

Анализируя архивные данные о параметрах ЖРО, сбрасываемых в р. Теча (табл. 1, 2), необходимо учитывать особенности радиохимических методов выделения и радиометричес-

Таблица 1

Усредненные значения мощности образования основных регламентных (технологических и нетехнологических) ЖРО (данные на декабрь 1951 – январь 1952 гг.) [9] и периоды сброса в р. Теча

Сбросной продукт	Гамма-активность, г-экв./сут	Бета-активность, Ки/сут	Период сброса в р. Теча
1. Технологические ЖРО:			
Продукт 757	45	90	С января 1949 г. по октябрь 1951 г.
Продукт 922	1250	3250	С 17 сентября 1951 по октябрь 1951 гг.
Продукты 91, 92	225	112	С декабря 1950 г. по октябрь 1951 г.
Продукт 673	16	40	С декабря 1950 г. по октябрь 1951 г.
2. Нетехнологические сбросы			
	~1140	~2070	С января 1949 г. по декабрь 1951 г.

Таблица 2

Усредненный радиохимический состав основных технологических и нетехнологических ЖРО (январь 1952 г.) [9]

Наименование раствора	Бета-активность (в %)					
	Nb	Zr	Ru	PЗЭ	Cs	Sr
Продукт 757	1,7	5,7	79,6	1,6	5,7	5,7
Продукт 922	0,7	1,5	49,4	3,5	21,6	23,2
Продукты 91, 92	72	25	3	–	–	–
Продукт 673	10	10	48	19	7	7
Нетехнологические сбросы	12,3	18,9	6,3	43,6	0,5	18,4

ких методов измерения активности бета-излучающих нуклидов, которые использовались на ПО “Маяк” в начале 1950-х гг. [1].

В 1950-х гг. на ПО “Маяк” анализируемые пробы ЖРО подвергались радиохимическому разделению (выделению) на пять-шесть групп химических элементов, обладающих сходными химическими свойствами [1]:

- стронциевая группа, в которую входили стронций, барий и кальций;
- цезиевая группа (цезий, рубидий, натрий);
- рутениевая группа;
- йодная группа;
- цирконий-ниобиевая группа;
- группа редкоземельных элементов (итрий, лантан, церий, празеодим и др.).

Существовали также методики химического

разделения циркония и ниобия, но из-за большой трудоемкости этих методик они использовались только в исключительных случаях.

Активность полученных после радиохимического выделения растворов (осадков) определялась путем измерения скорости счета бета-частиц на стандартной радиометрической установке с торцевым счетчиком. Такой “радионуклидный” состав здесь и далее будем называть “радиохимическим” [1].

Все методические вопросы, связанные с верификацией использовавшихся в 1950-х гг. методик радиохимического выделения и радиометрического измерения активности исследуемых проб, подробно изложены в работах [5, 6].

При анализе неопределенности результатов измерений активности суммы бета-излучающих нуклидов на торцевом счетчике

(в 1950-х гг.) необходимо учитывать уменьшение эффективности регистрации бета-частиц за счет их поглощения в слое:

- слюдяного окошечка счетчика (2–4 мг/см²);
- слое воздуха (2–6,1 мг/см²);
- измеряемой пробы (1–2 мг/см²).

Суммарная толщина поглощающего слоя на радиометрических установках в ЦЗЛ могла достигать 5–10 мг/см².

Поправку на поглощение бета-частиц измеряемой пробы в поглощающем слое определяли путем проведения серии дополнительных измерений (при различной толщине дополнительных алюминиевых фольг-поглотителей) с последующей графической экстраполяцией скорости счета к “нулевой” толщине поглощающего слоя. Такие измерения выполнялись не всегда. В различных аналитических лабораториях предприятия существовали разные варианты проведения исследований радиохимического состава изучаемых проб. Так, например, в аналитической лаборатории ЦЗЛ поправку на поглощение бета-частиц проводили только “...для наиболее ответственных препаратов, а именно для продуктов питания” [1]. Не проводились обычно и измерения по разделению активности ниобия и циркония. В аналитической лаборатории завода “Б” такие измерения проводились периодически. Известно, что на заводе “Б” в 1950-х гг. использовали бета-счетчики типа “Б-1” с толщиной слюдяного окна равной 0,12 мм (~35 мг/см²), что приводило к очень существенному занижению результатов измерений [2, 4].

Ранее было показано [5, 6], что при радиометрическом определении активности неизвестного радионуклидного состава методом регистрации скорости счета бета-частиц на торцевом счетчике в лаборатории ЦЗЛ измеренное значение активности может быть занижено для ⁹⁵Nb в 5–14 раз, для ¹⁰³Ru в 2,5–3,3 раза, а для ⁹⁵Zr в до 1,8 раз, а в лабораториях завода “Б” указанные радионуклиды практически совсем не регистрировались. Занижение экспериментальных результатов, обусловленное поглощением мягкого бета-излучения в слюдяном окошке торцевого счетчика и в слое воздуха между анализируемой пробой и окном счетчика, является одной из основных причин неопределенности имеющихся архивных данных (табл. 3).

2.1. Реконструкция радионуклидного состава и активности регламентных нетехнологических ЖРО

Анализируя данные, представленные в табл. 1 и 2, следует сделать следующие выводы [2]:

– основным (по мощности) источником поступления активности с нетехнологическими сбросами ЖРО являлся конденсат большой трубы завода “Б”. Вклад этого источника в суммарную активность нетехнологических сбросов в январе 1952 г. составлял ~70 %;

– относительные радиохимические составы всех основных типов регламентных нетехнологических ЖРО в январе 1952 г. были практически идентичны и очень близки к радиохимическому составу регламентных (технологических + нетехнологических) сбросов, которые были измерены 24–25 сентября 1951 г. (табл. 4 и 5).

Следует отметить, что сброс конденсата большой трубы в промканализацию (в р. Теча) был определен в проекте завода “Б”.

Известно, что в 1951 г. объем конденсата большой трубы (БТ) составлял ~25 м³/сут [1, 8], а средняя удельная активность достигала ~0,26 Ки/л [10], что соответствовало среднесуточному поступлению активности до 5000 Ки/сут, без учета поправки на толщину поглощающего слоя. Это значение хорошо соответствует данным табл. 4 (сентябрь 1951 г.), но в два раза меньше, чем в январе 1952 г. (см. табл. 1). В отчете [8] указывается, что уже во второй половине 1951 г. на узле растворения облученных блоков (отделение № 2) завода “Б” были установлены мультициклоны для снижения активности образующихся аэрозолей. Можно полагать, что использование во второй половине 1951 года мультициклонов в качестве газоочистного оборудования позволило значительно (до двух раз) сократить выброс бета-излучающих нуклидов в атмосферу. Точная дата установки мультициклонов и эффективность их эксплуатации (коэффициент очистки отходящих газов) – неизвестны. Поэтому, при проведении всех расчетов по реконструкции мощности сбросов ЖРО с нетехнологическими водами использовалось предположение, что в течении всего периода времени (с 1949 по 1951 гг.) доля

Таблица 3

Радиационные характеристики наиболее значимых продуктов деления, содержащихся в сбрасываемых ЖРО: ионизирующая способность гамма-излучения, отнесенная к единице активности M/Q [7] и K_a – коэффициент поглощения бета-частиц при проведении радиометрических измерений для поглощающего слоя толщиной 5,4 мг/см², 8,0 мг/см², 10,0 мг/см² и 35 мг/см² [5, 6]

Нуклид	M/Q [7], г-экв.Ра/Ки	K_a				Примечание	
		$\rho = 5,4 \text{ мг/см}^2$	$\rho = 8 \text{ мг/см}^2$	$\rho = 10 \text{ мг/см}^2$	$\rho = 35 \text{ мг/см}^2$		
1	¹³¹ I	0,26	0,83	0,80	0,74	0,371	
2	¹⁴⁰ Ba	0,140	0,85	0,80	0,75	0,480	
	¹⁴⁰ La	1,39	0,96	0,95	0,93	0,80	
3	¹⁴⁷ Nd	0,118	0,90	0,88	0,85	0,59	Как для ³⁶ Cl
4	¹⁴³ Pr	0,0	0,88	0,85	0,82	0,607	
5	¹⁴¹ Ce	0,051	0,88	0,83	0,77	0,46	Как для ⁹⁰ Sr
6	¹⁰³ Ru	0,345	0,51	0,40	0,25	0,01	Как для ¹⁴⁷ Pm
	^{103m} Rh	0,0255	–	–	–	–	
7	⁸⁹ Sr	0,0	0,942	0,92	0,90	0,764	
8	⁹¹ Y	0,00164	0,96	0,95	0,93	0,82	
9	⁹⁵ Zr	0,485	0,72	0,64	0,56	0,15	
	⁹⁵ Nb	0,508	0,31	0,20	0,084	0,0115	
10	¹⁴⁴ Ce	0,0155	0,87	0,83	0,79	0,62	
	¹⁴⁴ Pr	0,0182					
11	¹⁰⁶ Ru	0,0	0,99	0,99	0,98	0,94	
	¹⁰⁶ Rh	0,136					
12	¹⁴⁷ Pm	0,0	0,51	0,40	0,25	0,01	
13	⁹⁰ Sr	0,0	0,88	0,83	0,77	0,46	
	⁹⁰ Y	0,0	0,97	0,95	0,93	0,662	
14	¹³⁷ Cs	0,0	0,85	0,79	0,73	0,426	
	^{137m} Ba	0,391	–	–	–	–	
15	¹²⁵ Sb	0,333	0,719	0,623	0,527	0,209	
16	¹⁵¹ Sm	0,0	0,1	0,08	0,05	0,001	
17	¹⁵⁵ Eu	0,0472	0,53	0,40	0,269	0,02	

активности, поступавшей с конденсатом из трубы и мультициклонов, от общей активности перерабатываемого урана была постоянной (такой же как и в январе 1952 г.).

В работах [2, 5, 6] было показано, что результирующий радионуклидный состав регламентных нетехнологических ЖРО, направляемых в р. Теча в 1949–1951 гг., хорошо соответствует теоретическому радионуклидному

составу продуктов деления, накапливающихся в уране, для продолжительности облучения в реакторе и времени выдержки (до радиохимической переработки), характерных для соответствующего периода времени.

Реконструкцию ежемесячного поступления радионуклидов в р. Теча с регламентными нетехнологическими сбросами ЖРО будем проводить при следующих предположениях:

ДОЗИМЕТРИЯ НАСЕЛЕНИЯ ЮЖНОГО УРАЛА

Таблица 4

Параметры сбрасываемых в р. Теча радиоактивных отходов в период 25.09.1951–07.10.1951 г.

Дата	Объем ЖРО, м ³ /сут	Удельный γ -эквивалент <i>m</i> , мг-экв.Ра/л	Удельная активность q_p , мКи/л	Суточный сброс	
				г-экв.Ра	Ки
25.09.1951	8350	0,525	1,09	4383	9100
26.09.1951	8350	0,354	0,71	2950	5930
27.09.1951	8100	5,5	10,2	44 500	82 600
28.09.1951	8300	–	9,0	–	74 700
29.09.1951	8125	–	3,4	–	27 500
30.09.1951	7850	0,21	0,60	1650	4710
01.10.1951	7850	0,051	0,09	392	710
02.10.1951	8070	0,82	1,0	6620	8070
03.10.1951	8090	0,052	0,10	421	809
04.10.1951	8900	0,052	0,22	463	979
05.10.1951	8600	0,17	0,53	1462	4560
06.10.1951	9200	0,105*	0,35*	966	3220
07.10.1951	8800	0,105*	0,35*	924	3080

Примечание. * Результаты объединенной пробы за 6 и 7 октября 1951 г.

Таблица 5

Радиохимический состав объединенной пробы сбросных вод, отобранной 24 и 25 сентября 1951 г.

Показатель пробы	Удельная активность, мКи/л	Радиохимический состав, %				
		Sr	Ru + Rh	Cs	PЗЭ	Zr + Nb
Исходная проба (до центрифугирования)	1,2	19,9	7,8	2,7	48,0	21,0
Раствор (после центрифугирования)	0,37	49,2	8,3	9,0	3,5	30
Осадок	0,83	7,3	7,3	0	67,0	18,4

– радионуклидный состав нетехнологических сбросов соответствует теоретическому составу с временем выдержки равным продолжительности хранения облученного урана в бассейне выдержки;

– суммарная активность нетехнологических ЖРО, поступающая в р. Теча за каждый месяц, пропорциональна общей активности осколков деления в облученном уране, направляемом на радиохимическую переработку в данный месяц;

– коэффициент пропорциональности (нормированный коэффициент) определяется исходя из экспериментально измеренного значения

ежесуточного сброса активности в январе 1952 г. с нетехнологическими сбросами (2100 Ки/сут), значения общей активности поступившей на завод “Б” в январе 1952 г. и значений поправочных коэффициентов поглощения бета-частиц при проведении радиометрических измерений на торцевых бета-счетчиках (табл. 3);

– поступление активности с конденсатом большой трубы продолжалось в период с 1 сентября 1950 по 1 декабря 1951 г.

2.2. Реконструкция радионуклидного состава и активности регламентных технологических ЖРО

2.2.1. Продукт 757

Продукт 757 – щелочной декантат из отделения 7. Продукт 757 всегда классифицировался как малоактивный и с самого начала эксплуатации завода “Б” сбрасывался в р. Теча. В ноябре 1951 г. сбросы этого продукта были переключены на водоем Карачай. Среднесуточный сброс в 1951 г. составлял около $70 \text{ м}^3/\text{сут}$ с удельной активностью $\sim 1,4 \text{ мг-экв./л}$ (98 г-экв./сут).

В период с 25.09.1951 по 05.10.1951 гг. удельная активность этого продукта оценивалась в $\sim 0,8 \text{ мг-экв./л}$ ($\sim 56 \text{ г-экв./сут}$). В январе 1952 г. ежесуточный объем сброса этого продукта оценивался $\sim 90 \text{ м}^3/\text{сут}$ с удельной активностью $\sim 1 \text{ мКи/л}$ и $\sim 0,5 \text{ мг-экв./л}$.

При проведении реконструкции радионуклидного состава и ежемесячной активности сбросов продукта 757 в р. Теча использовали следующие предположения:

- распределение активности радионуклидов между радиохимическими группами задавалось по данным работы [9] (см. табл. 2);
- распределение активности каждого радионуклида в пределах каждой радиохимической группы задавалось исходя из теоретического отношения активности осколков деления в облученном уране реакторов “А” и “АВ-1” на момент радиохимической переработки.

2.2.2. Продукты 91, 92

Продукт 91 (раствор марганцевой пульпы в бисульфите) образовывался в процессе получения соли уранила в отделении 15 завода “Б”. Отделения 15 и 15а предназначались для получения соли уранила путем растворения натрийуранилацетата (поступавшего из отделения 6) в азотной кислоте, марганцевой очистки и осаждения. В отделении 15а была специальная емкость, в которой растворы выдерживались в течение шести месяцев для распада ^{95}Zr и ^{95}Nb перед их марганцевой очисткой и выделением урана.

2.2.3. Продукт 673

В отделении 2 завода “Б” производилось сначала предварительное растворение алюминиевых оболочек урановых блоков, а затем и самих блоков.

Образующиеся на первой стадии растворения алюминатные воды (продукт 61) до весны 1950 г. сбрасывали в емкости-хранилища комплекса “С”. С марта 1950 г. алюминатные воды после предварительной переработки в отделении 3 завода “Б” временно сбрасывали в водоем “Старое болото”. Этот тип ЖРО получил наименование “продукт 673”. С сентября по декабрь 1950 г. продукт 673 поступал на предварительную переработку в отделение 16, где он смешивался с другими типами ЖРО и некоторое время отстаивался в хроматной яме, а затем сбрасывался в р. Теча. Начиная с 20 декабря 1950 г. и до конца октября 1951 г. продукт 673 сбрасывали напрямую в р. Теча без какой-либо дополнительной очистки.

2.2.4. Продукт 922

Хранение и переработка различных типов высокоактивных ЖРО на заводе “Б” производилось в отделении 13 (комплексе “С”), и в отделении 16. В комплексе “С” хранение ЖРО производилось в специальных емкостях, изготовленных из листов нержавеющей стали толщиной 13 мм.

В начале 1950 г. в отделении 16 была смонтирована установка для опытно-промышленной проверки способа очистки щелочных декантатов из третьего отделения от стронция и хрома (VI). Щелочные ацетатные декантаты из отделения 3 (продукт 901) обычно направлялись на хранение в отделение 13 (комплекс “С”). На опытную установку в отделение 16 подавались ЖРО из комплекса “С” или непосредственно из отделения 3. Очистка проводилась методом хроматного осаждения. В результате образовывались следующие виды отходов:

- суспензия после осаждения хромата бария (продукт 920);
- суспензия хромата и карбоната бария после осаждения избытка бария содой (продукт 921);
- декантат после отстаивания продукта 921 (продукт 922).

Отсутствие прямых архивных данных о режиме поступления продукта 922 в р. Теча (период времени и периодичность сбросов), является основной неопределенностью реконструкции этого типа ЖРО [2].

При проведении работ по реконструкции сбросов продукта 922 в р. Теча использовали следующие предположения:

сбросы продукта 922 в р. Теча продолжались в период с 17 сентября до 01 ноября 1951 г.;

– мощность сбросов бета-излучающих нуклидов принята равной 3250 Ки/сут (табл. 1);

– радиохимический состав сбросов принят по данным табл. 2;

– распределение активности между различными радионуклидами, входящими в каждую радиохимическую группу, принято равным теоретическому отношению активности оскол-

ков деления в облученном уране на момент радиохимической переработки с учетом дополнительной выдержки на заводе “Б” (25 суток).

Результаты реконструкции приведены в табл. 6.

Анализ результатов реконструкции регламентных сбросов, представленных в табл. 6, показывает, что основная часть активности (~80%) поступила в р. Теча с нетехнологическими ЖРО.

3. РЕКОНСТРУКЦИЯ РАДИОНУКЛИДНОГО СОСТАВА И АКТИВНОСТИ ЗАРЕГИСТРИРОВАННЫХ НЕРЕГЛАМЕНТНЫХ (АВАРИЙНЫХ) СБРОСОВ

Как уже отмечалось ранее, контроль за сбросом ЖРО в р. Теча был организован на ПО “Маяк” в августе-сентябре 1951 г. Начиная

Таблица 6

Результаты реконструкции суммарного поступления радионуклидов в р. Теча с регламентными технологическими и нетехнологическими сбросами ЖРО в период с мая 1949 по октябрь 1951 гг. в кКи

Радионуклид	Наименование продукта					Все типы ЖРО
	нетехнологические сбросы	продукт 757	продукты 91,92	продукт 673	продукт 922	
⁹⁵ Zr	365	5,15	44,8	3,53	2,39	420,9
⁹⁵ Nb	525	7,41	84,9	5,08	3,44	625,8
⁸⁹ Sr	246	4,87	0	1,49	30,4	282,8
⁹⁰ Sr / ⁹⁰ Y	7,23	0,14	0	0,045	0,902	8,3
⁹¹ Y	320	0,46	0	1,38	1,57	323,4
¹⁰³ Ru / ^{103m} Rh	133	123	2,01	18	116	392,0
¹⁰⁶ Ru / ¹⁰⁶ Rh	11,5	10	2,01	1,61	10	35,1
¹³⁷ Cs / ^{137m} Ba	7,49	4,04	0	1,34	24,8	37,7
¹⁴¹ Ce	218	0,325	0	0,911	1,06	220,3
¹⁴⁴ Ce + ¹⁴⁴ Pr	370	0,517	0	1,63	1,81	374,0
¹⁴⁷ Nd	10,2	0,019	0	0,0343	0,0411	10,3
¹⁴³ Pr	48,3	0,083	0	0,175	0,211	48,8
¹³¹ I	4,64	1,03*	0	0,0115	0,0731	5,8
¹⁴⁷ Pm	28,6	0,0397	0	0,126	0,140	28,9
¹⁴⁰ Ba	43,2	1,03	0	0,217	4,70	49,1
¹⁴⁰ La	49,6	0,087	0	0,176	0,213	50,1
Сумма*	2395	158	134	36	199	2922

Примечание. * Активность ^{103m}Rh, ¹⁰⁶Ru, ^{137m}Ba на торцевом счетчике не регистрировалась, поэтому суммарная активность посчитана только с учетом ⁹⁰Y.

с этого периода времени и до конца 1951 г. в архивной документации содержатся данные о двух мощных нерегламентных (аварийных) сбросах:

– первый сброс был зафиксирован 27–29 сентября 1951 г., с суммарной активностью ~185000 Ки (см. табл. 4, 5);

– второй сброс произошел в октябре 1951 г. Суммарное поступление активности бета-излучающих радионуклидов в р. Теча в октябре 1951 г. оценивается [10] в ~1,3 млн. Ки, причем основная часть активности была сброшена в первой и второй декадах (табл. 7).

Анализ данных, приведенных в табл. 4 и 7, показывает, что в период нерегламентных (аварийных) сбросов ежесуточное поступление активности в р. Теча достигло 60–80 тыс. Ки/сут, что в 30–40 раз больше, чем в период регламентных сбросов.

Для реконструкции радиоактивного состава указанных аварийных сбросов проанализируем отношение “активности” гамма-излучающих нуклидов M (г-экв.Ра) к активности бета-излучающих нуклидов Q (Ки). Известно, что это отношение (M/Q) зависит от “возраста” смеси продуктов деления (времени выдержки) – t .

Указанная зависимость приведена на рис. 3 для различной толщины поглощающего слоя (см. табл. 3) $\rho = 0; 5,4; 8,0; 10,0$ и 35 мг/см^2 (суммарная толщина слюды окошка счетчика и слоя воздуха), которая могла быть в 1950-х гг. при проведении радиометрических измерений удельной активности бета-излучающих осколков деления на торцевом бета-счетчике.

Анализ данных, приведенных на рис. 3, показывает, что для времени выдержки $t \approx 50\text{--}150$ сут характерное значение отношения M/Q равно $0,25\text{--}0,60$ г-экв.Ра/Ки (в зависимости от толщины ρ), а для выдержки $1000 \text{ сут} > t > 500$ сут отношение $M/Q \approx 0,06\text{--}0,09$ г-экв.Ра/Ки.

3.1. Аварийный сброс 27–29 сентября 1951 г.

В отчете [8] указывается, что аварийный сброс активности 27–29 сентября 1951 г. совпадает по времени с пуском воды на охлаждение емкостей № 7 и № 20 комплекса “С-4” хранилища высокоактивных отходов. Дополнительным подтверждением поступления активности именно из этих емкостей является высокий уровень загрязнения воды в подводящих канализационных линиях [8]. Известно, что емкость № 7

Таблица 7

Среднесуточные (по декадам) и месячные сбросы активности бета-излучающих радионуклидов Q (Ки) и гамма-излучающих радионуклидов M (г-экв.Ра) в р. Теча за октябрь–декабрь 1951 г. по данным работы [10]

Месяц 1951 г.	Декада месяца	Сброс ЖРО		M/Q , г-экв.Ра/Ки
		Q , Ки/сут (Ки/мес)	M , г-экв./сут (г-экв.Ра/мес)	
Октябрь	1	60115	3992	0,0664
	2	62500	4836	0,0774
	3	6300	2700	0,430
	месяц	(1290000)	(115380)	0,0894
Ноябрь	1	2900	1174	0,405
	2	5420	4300	0,793
	3	678	400	0,590
	месяц	(84370)	(59140)	0,701
Декабрь	1	267	80	0,300
	2	347	148	0,426
	3	122	46	0,377
	месяц	(7400)	(2730)	0,369

комплекса "С-4" была заполнена 15.09.1951 г.

Реконструкцию радионуклидного состава указанного аварийного сброса проведем при следующих предположениях:

– аварийная (негерметичная) емкость комплекса "С-4" заполнялась в течении 7 сут теоретической смесью продуктов деления (с продолжительностью облучения в реакторе $T=150$ сут – среднее для реакторов "А" и "АВ-1");

– измеренное 27.09.1951 года значение $M/Q = 0,54$ г-эquiv.Ра/Ки, что характерно (в пределах экспериментальной погрешности) для "свежей" смеси продуктов деления (см. рис. 3) с "возрастом" не более ~100 сут. Толщина поглощенного слоя в расчетах принята 35 мг/см^2 ;

– "возраст" теоретической смеси продуктов деления, хранящихся в емкости на момент аварийного сброса (27–29 сентября 1951 г.), складывается из времени хранения облученного урана в бассейне выдержки реактора – t , продол-

жительность заполнения емкости (7 сут), плюс продолжительность хранения высокоактивных ЖРО в емкости – τ . В августе-сентябре 1951 г. среднее время выдержки облученного урана t изменялось в диапазоне от 50 до 60 сут при среднем значении 55 сут, а продолжительность хранения ЖРО в емкости τ составляла 13 сут;

– измеренное значение суммарной активности бета-излучающих нуклидов в аварийном сбросе (27–29.09.1951 г.) примем равной $A_{\text{итм}} = 185000 \text{ Ки}$ (см. табл. 4).

3.2. Нерегламентный сброс активности в октябре 1951 г.

В первой и второй декадах октября 1951 г. был осуществлен беспрецедентный по масштабам сброс нерегламентных ЖРО в р. Теча с суммарной активностью $Q \approx 1,23 \cdot 10^6$ млн. Ки (см. табл. 7). Для этих сбросов отношение

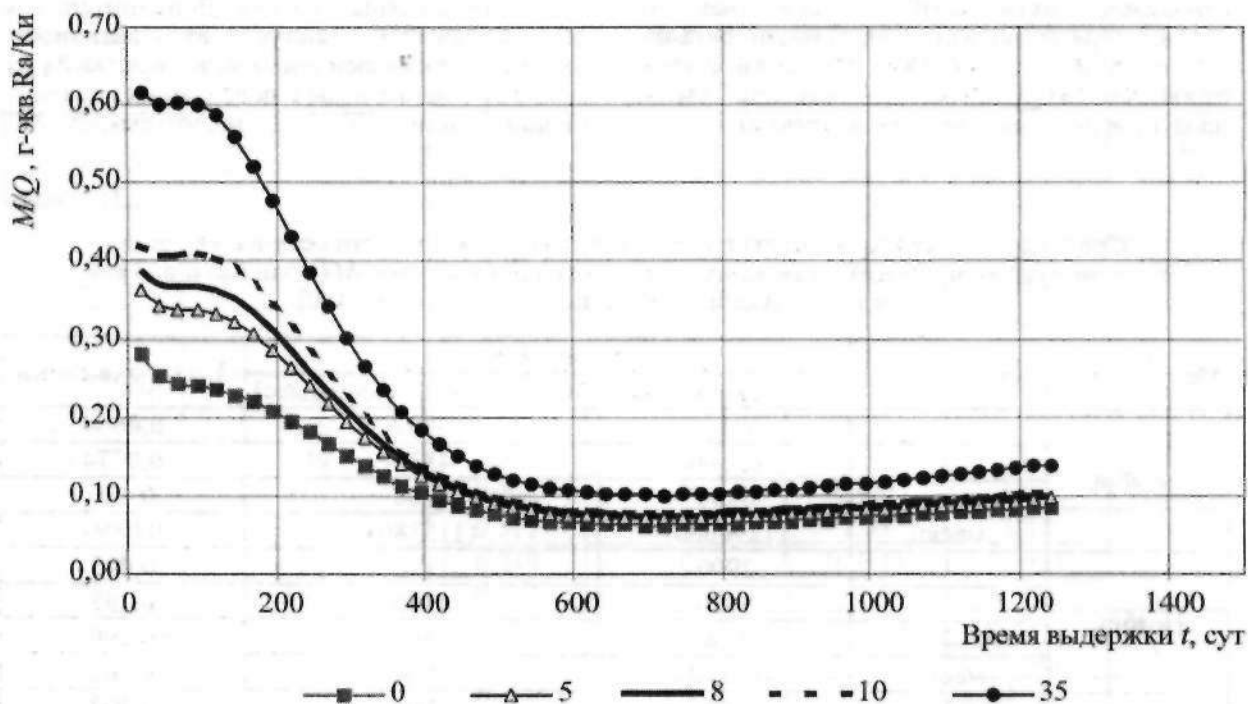


Рис. 3. Зависимость отношения гамма-эквивалента M к активности Q теоретической смеси продуктов деления образующейся в уране ядерного реактора (при продолжительности облучения $T = 135$ сут) в зависимости от времени выдержки t , для различной толщины поглощающего слоя ($\rho = 0; 5,4; 8,0; 10,0; 35,0 \text{ мг/см}^2$)

ДОЗИМЕТРИЯ НАСЕЛЕНИЯ ЮЖНОГО УРАЛА

(M/Q) изменялось в диапазоне от 0,066 до 0,077 г-экв.Ра/Ки, что характерно для теоретической смеси осколков деления с суммарным временем выдержки ("возрастом") $t \approx 400-800$ сут (см. рис. 3). Следует отметить, что в октябре 1951 г. максимально возможный "возраст" продуктов деления не мог превышать ~ 1000 сут (отходы, образовавшиеся в начале 1949 г.).

Специальные варианты расчеты показали [2], что параметры рассматриваемого сброса (суммарная активность $1,23 \cdot 10^6$ Ки и $M/Q = 0,072$ г-экв.Ра/Ки) наилучшим образом соответствуют следующим "возрастным" характеристикам смеси продуктов деления (при толщине поглощающего слоя $\rho = 8$ мг/см²):

– средняя продолжительность облучения

урана в реакторе "А" $T_R = 165$ сут – фиксированный параметр;

– среднее время выдержки облученного урана в апреле-сентябре 1950 г. в бассейне составляло $t = 62$ сут – фиксированный параметр;

– расчетная продолжительность заполнения емкостей-хранилищ ВАО равна $T_{\text{зап}} = 185$ сут (параметр подгонки);

– расчетная продолжительность выдержки ВАО в емкостях после их заполнения равна $T_{\text{выд}} = 310$ сут (параметр подгонки).

Результаты реконструкции поступления радионуклидов в р. Теча с регламентными и зарегистрированными аварийными сбросами ЖРО приведены в табл. 8. Следует отметить, что при реконструкции поступления активнос-

Таблица 8

Результаты реконструкции регламентных и зарегистрированных аварийных сбросов в р. Теча за период с мая 1949 по октябрь 1951 гг.

в кКи

Нуклид	Регламентные сбросы (1949–1951 гг.)	Нерегламентные сбросы (1951 г.)		Всего
		сентябрь	октябрь	
⁹⁵ Zr	421	49,7	39,4	510,1
⁹⁵ Nb	626	80,9	86,6	793,5
⁸⁹ Sr	283	29,5	8,85	321,4
⁹⁰ Sr / ⁹⁰ Y	8,31	1,58	57	66,9
⁹¹ Y	323	41,7	23,4	388,1
¹⁰³ Ru / ^{103m} Rh	392	13,4	1,13	407,5
¹⁰⁶ Ru / ¹⁰⁶ Rh	35,1	2,31	42,8	80,2
¹³⁷ Cs / ^{137m} Ba	37,7	1,63	59,1	98,4
¹⁴¹ Ce	220	18,5	0,475	239,0
¹⁴⁴ Ce + ¹⁴⁴ Pr	374	73	1110	1557,0
¹⁴⁷ Nd	10,3	0,115	0	10,4
¹⁴³ Pr	48,8	1,01	0	49,8
¹³¹ I	5,8	0,0145	0	5,8
¹²⁵ Sb	-	0,0717	2,05	2,1
¹⁵¹ Sm	-	0,0371	1,36	1,4
¹⁵⁵ Eu	-	0,0485	1,56	1,6
¹⁴⁷ Pm	28,9	6,06	172	207,0
¹⁴⁰ Ba	49,1	0,76	0	49,9
¹⁴⁰ La	50,1	0,87	0	51,0
Сумма*	2922	323	1663	4908

Примечание. * Активность ^{103m}Rh, ¹⁰⁶Ru, ^{137m}Ba на торцевом счетчике не регистрировалась, поэтому суммарная активность посчитана только с учетом ⁹⁰Y.

ти с аварийным сбросом в сентябре и октябре 1951 г. были дополнительно учтены следующие радионуклиды: ^{125}Sb , ^{151}Sm и ^{155}Eu . Поступление указанных радионуклидов с регламентными сбросами пренебрежимо мало.

Анализ результатов реконструкции сбросов ЖРО в р. Теча за период с 1949 по 1951 гг. (см. табл. 6 и 8) позволяет сделать следующие выводы:

— основная часть (~99 %) активности короткоживущих радионуклидов с периодом полураспада менее 15 сут (^{131}I , ^{147}Nd , ^{143}Pr , ^{140}Ba) поступила в воды реки с регламентными сбросами, преимущественно (~80 %) с нетехнологическими ЖРО. Мощность сбросов этих радионуклидов определялась, главным образом, эффективным временем хранения облученного урана в бассейнах выдержки и в пределах одного календарного года могла изменяться до двух порядков величины;

— поступление в р. Теча осколков деления со средним периодом полураспада (^{95}Zr , ^{90}Sr , ^{91}Y , ^{103}Ru , ^{141}Ce) также происходило, в основном, с регламентными сбросами, но распределение во времени мощности сбросов этих радионуклидов было более равномерным;

— радионуклиды с периодом полураспада равным примерно одному году (^{106}Ru , ^{144}Ce) поступали в р. Теча как с регламентными сбросами (~25–40 %), так и с нерегламентными (аварийными) сбросами (~60–75 %). Мощность поступления этих радионуклидов с регламентными сбросами характеризовалась, в основном, объемами переработки облученного урана (для нетехнологических ЖРО) и периодом сброса технологических продуктов (для технологических ЖРО). Более 50 % ^{106}Ru и около ~70 % ^{144}Ce поступило в воды р. Теча в течение первых двух декад октября 1951 г.;

— основная часть (более 60 %) активности долгоживущих продуктов деления с периодом полураспада больше одного года (^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{147}Pr , ^{125}Sb , ^{155}Eu и др.) поступила в р. Теча с аварийным сбросом в первые две декады октября 1951 г.

ВЫВОДЫ

1. Проанализированы основные факторы, определявшие радионуклидный состав жидких радиоактивных отходов, которые образовывались

на радиохимическом производстве ПО "Маяк" в период с 1949 по 1951 гг. и сбрасывались в открытую гидрографическую систему р. Теча.

2. Проанализированы архивные данные о радиохимическом составе и суммарной активности различных видов технологических и нетехнологических регламентных ЖРО, образовавшихся в 1951–1952 гг. на радиохимическом заводе "Б". Анализ проведен с учетом особенностей радиохимических методов выделения и радиометрических методов измерения активности бета- и гамма-излучающих радионуклидов, которые использовались в аналитических лабораториях ЦЗЛ и завода "Б" в 1950-х гг.

3. Предложена методика и выполнены расчеты помесячного радионуклидного состава и мощности сброса в р. Теча активности осколков деления с нетехнологическими ЖРО, со всеми основными технологическими сбросными продуктами с мая 1949 по октябрь 1951 гг. и с зарегистрированными службой радиационного контроля нерегламентными (аварийными) сбросами в сентябре и октябре 1951 г.

4. Приведенные результаты следует рассматривать в качестве предварительной оценки действительных значений, поскольку при проведении расчетов использован ряд предположений, введенных вследствие недостаточной полноты данных, найденных в архивах. В дальнейшем, оценки могут уточняться по мере нахождения дополнительных архивных источников, а также в результате углубленного анализа радиохимических и радиометрических методик, использовавшихся на ПО "Маяк" в 1950-х гг.

Анализ полученных результатов реконструкции приведен во второй части данной публикации [11].

Работа выполнена в рамках проекта МНТЦ № 2841.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ильин Д.И. Миграция радиоактивных веществ из открытых водоемов: Диссертация на соискание ученой степени доктора технических наук / Архив ПО "Маяк", ф. 11, оп. 30, ед.хр. 839. — Озерск, 1956. — 270 с.
2. Итоговый отчет по р. Теча: отчет по проекту

- МНТЦ № 2841 / Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г. и др. – Озерск, 2008. – 142 с.
3. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г. и др. Методика реконструкции радионуклидного состава и активности осколков деления, накапливающихся в облученном уране на момент его радиохимической переработки на заводе “Б” ПО “Маяк” в начале 1950-х гг. // Вопросы радиац. безопасности. – 2008. – Спецвыпуск. – С. 35–51.
4. Восстановление параметров источника загрязнения р. Теча на основании данных исторических и технологических отчетов по сбросам: отчет по Проекту МНТЦ № 2841 / Алексахин А.И., Стукалов П.М., Иванов И.А. и др. – Озерск, 2006. – 58 с.
5. Y.G. Mokrov. Reconstruction of the radionuclide spectrum of liquid radioactive waste released into the Techa River in 1949–1951 // Radiation and Environmental Biophysics. – 2003. – No. 42. – P. 7–15.
6. Мокров Ю.Г. К вопросу о реконструкции радионуклидного состава жидких радиоактивных отходов сбрасываемых в р. Теча в период 1949–1951 гг. // Вопросы радиац. безопасности. – 2001. – № 3. – С. 32–38.
7. Радиационные характеристики продуктов деления: Справочник / Гусев Н.Г., Рубцов П.М., Коваленко В.В., Колобашкин В.М. – М.: Атомиздат, 1974. – 224 с.
8. Отчет комиссии ПГУ о загрязнении территории, прилегающей к заводу им. Менделеева / ПГУ, ГХЗ им. Менделеева; Александров А.П., Мишенков Г.В., Тарасенко Н.Ю. и др. – М., 1951. – 81 с.
9. О мероприятиях по ликвидации сброса активных вод с завода “Б” и по снижению облучаемости на заводе: Докладная записка / РИАН, ГХЗ им. Менделеева; Старик И.Е., Никольский Б.П., Ильин Н.В. – М., 1952. – 103 с.
10. Отчет по изучению состава сбросных продуктов объекта “Б” / Лаборатория завода “Б” ГХЗ им. Менделеева; Демьянович М.А., Пашенко А.Ф., Ермолаев М.И. – М., 1952. – 45 с.
11. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г. и др. Восстановление параметров источника сбросов жидких радиоактивных отходов радиохимического производства в р. Теча. Сообщение 2: Анализ результатов реконструкции и предложения по продолжению работ // Вопросы радиац. безопасности. – 2008. – Спецвыпуск. – С. 92–110.