На правах рукописи

Овчинников Александр Викторович

РАЗРАБОТКА МЕТОДА ПО ОЦЕНКЕ ДОЗЫ ВНУТРЕННЕГО ОБЛУЧЕНИЯ ПЕРСОНАЛА ПРИ ПОСТУПЛЕНИИ РАДИОНУКЛИДОВ АМЕРИЦИЯ И ПЛУТОНИЯ ЧЕРЕЗ ПОВРЕЖДЁННЫЕ КОЖНЫЕ ПОКРОВЫ

05.26.02 – Безопасность в чрезвычайных ситуациях (по отраслям) (ядерный топливно-энергетический комплекс)

Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Северск – 2021 г.

Работа выполнена в ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России, Акционерном обществе «Сибирский химический комбинат» (АО «СХК»)

Научный руководитель:
Изместьев Константин Михайлович - кандидат физико-математических наук, заместитель технического директора Акционерного общества «Сибирский химический комбинат»

Официальные оппоненты:
Яковлева Валентина Станиславовна - доктор технических наук, профессор Отделения ядерно-топливного цикла Национального исследовательского Томского политехнического университета;

Панфилов Александр Павлович – кандидат технических наук, советник Службы генерального инспектора Госкорпорации по атомной энергии «Росатом».

Ведущая организация:
Федеральное государственное унитарное предприятие «Южно-Уральский институт биофизики» ФМБА России, г. Озерск.

Защита диссертации состоится «23» _сентября_ 2021 г. В 10 час. 00 мин. На заседании диссертационного совета Д 462.001.02 по адресу: г. Москва, ул. Живописная, д.46. тел. +7(499) 190-96-98

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте Федерального государственного бюджетного учреждения «Государственный научный центр Российской Федерации - Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна» Федерального Медико-биологического агентства России.

Автореферат разослан «__» _____ 2021 г.

Учёный секретарь
Диссертационного совета Д.462.001.02
кандидат технических наук А.А. Молоканов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ИССЛЕДОВАНИЯ

Актуальность исследования.

Реакторы на быстрых нейтронах являются новым поколением реакторов, которые в будущем могут полностью заменить собой современные реакторы, работающие на тепловых нейтронах. Реакторы такого типа используют в качестве топлива смесь урана и плутония, что позволяет нарабатывать дополнительные количества плутония, достаточные для повторного обеспечения реакторов топливом. В настоящее время существует несколько различных вариаций топлива, которое может быть использовано в реакторах на быстрых нейтронах, например, МОКС- или СНУП-топливо. Несмотря на их технические различия, общим является необходимость выделения фракции плутония и её последующим использованием при фабрикации топливных элементов.

Работа предприятий, занимающихся переработкой ОЯТ, и заводов по фабрикации топлива, содержащего нуклиды плутония, сопровождается поступлением радиоактивных веществ в воздух рабочих помещений и их осаждением на поверхности оборудования, инструментов, приборов, спецодежды и т.п. В реальной практике работы человека с открытыми источниками, содержащими плутоний, нужно учитывать несколько наиболее значимых путей поступления в организм данного радионуклида: ингаляционный, поступление через кожные покровы (включая неповрежденную кожу и «раневой» путь поступления), а также пероральный путь поступления. При этом, обслуживающий персонал может быть подвержен значительным дозовым нагрузкам.

Опыт эксплуатации радиохимических и химико-металлургических заводов свидетельствует о том, что наиболее часто актиниды поступают в организм работников ингаляционным путем. Однако, наблюдения за дозами внутреннего облучения персонала различных предприятий (например, таких как ПО «Маяк» и АО «СХК») позволяет утверждать, что за последние десятилетия хроническое ингаляционное поступление радионуклидов с промышленными аэрозолями не приводит к значительному переоблучению персонала.

В то же время существующие производственные условия не позволяют полностью исключить случаи поступлений радионуклидов через поврежденные кожные покровы. Частота возникновения таких случаев высока и наряду с ингаляционным поступлением, «раневой» путь поступления радиоактивных веществ является основным для производственных и лабораторных условий. Так, в литературе встречаются сообщения о 1250 случаях подкожного поступления радионуклидов, произошедших в Виндскейле (Schofield G.B., 1964), 230 случаях в Хэнфорде (Jech J.J. et al., 1969), 148 случаях ранений с альфа-излучателями в Карлзруе (Ohlenschlager L., 1970), 137 ранениях, потенциально загрязненных трансурановыми элементами в Лос Аламосе (Johnson L.J., Lawrence J.N.P., 1974), 385 случаях, произошедших на «Маяке» (Bazhin A.G. et al., 1994) и

200 случаях в АО «СХК» (Ovchinnikov A.V. et al., 2016). Также существует большое количество единичных сообщений о поступлениях радионуклидов через поврежденные кожные покровы (Thompson R.C., 1976).

Чаще всего «раневые» случаи представляют наибольшую опасность (Маслюк А.И. и др., 2005), так как количество одномоментно поступающих напрямую в кровь радионуклидов может иметь высокие значения. Для оценки степени риска возникновения негативных последствий определяют такие дозиметрические параметры, как поступление и ожидаемая эффективная доза (ОЭД) внутреннего облучения. Правильная их оценка позволяет выбрать наиболее эффективную программу медицинского сопровождения для каждого случая в отдельности. Используемые в настоящее время медицинские техники сводятся либо к хирургическому иссечению загрязненных радионуклидами тканей (для предотвращения дальнейшего поступления), либо к использованию различных препаратов (для ускорения процесса выведения радионуклидов из организма). Помимо медицинского сопровождения пациента, понимание доз, получаемых человеком в результате поступления радионуклидов через поврежденные кожные покровы, позволяет корректировать его дальнейшую трудовую деятельность. В некоторых случаях дозы внутреннего облучения настолько велики, что дальнейшая работа человека в контакте с радиоактивными веществами должна быть полностью исключена, а в некоторых случаях, несмотря на высокие уровни поступления радионуклидов, человек может продолжать работать в прежних условиях, но с установлением индивидуальных контрольных уровней. Таким образом, определение величины поступления и ОЭД внутреннего облучения является важнейшей задачей, которая должна решаться в первые часы после выявления случаев «раневого» поступления.

Определение величин поступления и ОЭД на указанных выше производствах, является нетривиальной задачей, ввиду наличия нескольких причин. Во-первых, для решения такой задачи требуется использование наиболее точного оборудования. Применяемое оборудование должно позволять производить регистрацию экстремально низких активностей радионуклидов, депонированных во внутренних органах и тканях или выводимых вместе с суточной экскрецией. Во-вторых, требуется понимание биологических процессов, происходящих при поступлении радионуклидов в организм человека через поврежденные кожные покровы. Необходимо учитывать поведение радионуклидов непосредственно в месте повреждения кожного покрова, их кинетику после поступления в кровяную и лимфатическую системы человека, особенности их депонирования во внутренних органах и тканях и выведения из организма. Задача определения величины поступления усложняется еще тем, что в чрезвычайных ситуациях, связанных с повышенным облучением, для снижения дозовых нагрузок человеку назначают медицинские препараты, ускоряющие выведение

радионуклидов, что может полностью изменять естественные процессы их обмена и выведения, протекающие в человеческом организме.

В настоящее время выделяют две основные группы методов, позволяющие производить индивидуальный дозиметрический контроль внутреннего облучения человека. Первая группа методов – методы косвенной дозиметрии, которые предполагают измерение радионуклидов, содержащихся в суточной экскреции пациента. Вторая группа методов представлена методами прямой дозиметрии, которые основываются на непосредственном измерении содержания радионуклидов в тех или иных органах и тканях человека. Такие методы являются более надёжными по сравнению с косвенными, так как предоставляют широкие возможности по измерению радионуклидов, содержащихся сразу в нескольких ключевых органах и тканях человека (основные органы депонирования для плутония и америция – печень, костные ткани, лимфатические узлы).

Несмотря на перспективность второй группы методов, для случаев поступления плутония почти всегда используется исключительно методы косвенной дозиметрии. Этот факт обусловлен тем, что обладающий высокой альфа-активностью плутоний почти не имеет гамма-линий, которые могли бы быть измерены напрямую. Однако, плутоний имеет дочерний продукт распада – америций, который почти всегда поступает в организм человека вместе с родительским радионуклидом и имеет измеримую гамма-линию 59,6 кэВ. Таким образом, при условии использования достаточно точного оборудования, применение прямых методов контроля для случаев поступления плутония через поврежденные кожные покровы является доступным и представляется более эффективным для определения необходимых дозиметрических параметров.

Несмотря на то, что вопрос о выполнении прямых измерений плутония по его дочернему продукту распада америцию представляется возможным, существует ряд методических проблем, связанных с интерпретацией таких измерений. Например, описанию особенностей выведения плутония под воздействием медицинских препаратов (прежде всего препарата – «пентацин») в настоящее время посвящено лишь небольшое количество научных работ (Щадилов А.Е., 2010; Konzen K., 2014; Breustedt B. et al, 2009), а для описания аналогичных процессов, происходящих с америцием, вовсе отсутствуют какие-либо математические модели. Отсутствие подобных исследований во многом обусловлено ограниченным количеством экспериментальных данных. Сбор необходимых статистических данных возможен только в случае возникновения реальных случаев поступления радионуклидов америция и плутония через поврежденные кожные покровы у персонала плутониевых производств. Подобные наблюдения производились, например, в АО «СХК» (Богданов И.М. и др., 2018; Изместьев К.М. и др., 2018), где за последние 5 лет произошло 10 таких случаев, а по 6 из них удалось собрать большое количество результатов измерений.

Таким образом, настоящая работа направлена на решение имеющихся методических проблем в области дозиметрического контроля поступления америция и плутония через поврежденные кожные покровы, путём исследования случаев, произошедших в реальных производственных условиях у персонала АО «СХК».

Цель исследования

Цель данного исследования заключается в совершенствовании систем и средств мониторинга чрезвычайных ситуаций путём разработки метода по оценке дозы внутреннего облучения персонала при поступлении радионуклидов америция и плутония через повреждённые кожные покровы с учётом эффектов от применения препарата «пентацин» в сочетании с хирургическим иссечением мягких тканей.

Задачи исследования

Поставленная цель исследования потребовала решения следующих задач:

1. Произвести анализ существующих подходов к моделированию процессов обмена радионуклидов америция и плутония во внутренних органах и тканях человека, на основе которого выбрать подходящий для дальнейших исследований математический формализм и разработать на его основе методический подход, позволяющий производить уточнение основных параметров моделей, а также выполнять расчёты дозиметрических величин по результатам косвенных и прямых дозиметрических измерений.
2. На основе фактических данных, накопленных в ходе наблюдения за произошедшими в АО «СХК» случаями, предложить модель для описания обмена америция, поступившего вместе с радионуклидами плутония во внутренние органы и ткани человека через повреждённые кожные покровы, с учётом эффекта от применения препарата «пентацин» и хирургического иссечения мягких тканей.
3. Разработать метод контроля внутреннего облучения при поступлении америция и плутония через повреждённые кожные покровы, провести верификацию метода на примере случаев поступления радионуклидов америция и плутония через поврежденные кожные покровы у персонала АО «СХК».

Основные положения, выносимые на защиту

1. Основанный на принципе камерных биокинетических моделей методический подход к обработке результатов косвенных и прямых измерений радионуклидов плутония и америция в организме персонала, позволяющий проводить уточнение основных параметров таких моделей и выполнять расчёты нормируемых дозиметрических величин.
2. Параметры модели для описания обмена хелатируемого америция, поступившего вместе с радионуклидами плутония во внутренние органы и ткани человека через повреждённые кожные покровы.
3. Метод контроля внутреннего облучения при поступлении америция и плутония через повреждённые кожные покровы,

верифицированный на примере случаев поступления радионуклидов америция и плутония через поврежденные кожные покровы у персонала АО «СХК».

Научная новизна исследования заключается в следующем:

1. Разработан методический подход к обработке результатов косвенных и прямых измерений радионуклидов плутония и америция в организме персонала, позволяющий:

- выполнять анализ и оптимизацию констант переноса камерных биокинетических моделей с одновременным учётом результатов наблюдений, накапливаемых в ходе дозиметрического сопровождения сразу нескольких случаев поступления америция и плутония через повреждённые кожные покровы; при этом, уточнение констант переноса основывается на использовании всех возможных результатов измерений, выполняемых прямыми и косвенными методами;
- осуществлять сравнение (по степени сходимости с результатами дозиметрических наблюдений) различных камерных биокинетических моделей между собой;
- выполнять расчёты нормируемых дозиметрических величин, необходимые для проведения мероприятий по ограничению и оптимизации облучения персонала.

2. Впервые предложены параметры камерной биокинетической модели для описания обмена хелатируемого америция, поступившего вместе с радионуклидами плутония во внутренние органы и ткани человека через повреждённые кожные покровы. Использование такой модели позволяет дополнить комплексный анализ данных, накапливаемых в ходе дозиметрического сопровождения случаев поступления радионуклидов америция и плутония через повреждённые кожные покровы, результатами прямых измерений содержания америция в печени и лимфатических узлах, а также использовать для анализа результаты определения суммарной активности америция и плутония в месте повреждения кожного покрова и суточном количестве мочи.

3. Разработан метод контроля внутреннего облучения при поступлении америция и плутония через повреждённые кожные покровы, верифицированный на примере случаев поступления радионуклидов америция и плутония через поврежденные кожные покровы у персонала АО «СХК», включающий:

- рекомендации по организации радиационного контроля (включающего выбор контрольной группы персонала, периодичности контроля, измерительного оборудования и методов выполнения измерений и т.п.) на предприятии в части выявления и дозиметрического сопровождения случаев поступления радионуклидов через поврежденные кожные покровы;
- рекомендации по выполнению последовательной оценки величин поступления и доз внутреннего облучения с учётом введения препарата «пентацин» и хирургического иссечения мягких тканей.

Практическая ценность работы

На основе результатов работы в практику эксплуатации плутониевых производств АО «СХК» внедрен расчетно-измерительный комплекс для анализа и расчета доз внутреннего облучения в случаях поступления радионуклидов через поврежденные кожные покровы. Расчетно-измерительный комплекс основывается на предложенной в настоящей работе модели для описания обмена хелатируемого америция, что позволяет включить в программу расчета доз прямые измерения содержания радионуклидов во внутренних органах и тканях.

Расчетно-измерительный комплекс позволяет не только проводить расчет величин поступления радионуклидов плутония и америция в рану и соответствующую ОЭД, но и может быть использован для оценки годового поступления указанных радионуклидов во внутренние органы и ткани и реализованной эффективной дозы, получаемой пациентом в течение любого календарного года, последующего моменту поступления в рану. Данная особенность позволяет ежегодно уточнять дозу внутреннего облучения в зависимости от применения долгосрочного медицинского сопровождения работника. Такой подход позволяет наиболее гибко корректировать трудовую деятельность работника путём ежегодного пересмотра и установления индивидуальных контрольных уровней.

Личный вклад автора

Результаты работ, изложенные в диссертации, получены лично автором.

База исследования.

Экспериментальная работа проводилась на базе АО «СХК». К исследованию были привлечены работники критических профессий химико-металлургического завода. За период наблюдений с 2013 по 2019 год выявлено 10 случаев раневого поступления радионуклидов в организм работников АО «СХК». Исследования опираются на результаты обследования работников АО «СХК»:

- в ЛДВО ЦГиЭ №81 ФМБА России;
- в ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России;
- на установках СИЧ АО «СХК».

Апробация работы

Апробация работы осуществлена в ходе текущего контроля внутреннего облучения у персонала АО «СХК». Результаты исследований были представлены и обсуждены на VII и VIII Международных научно-практических конференциях «Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине» (Томск, НИ ТПУ, 2015 и 2016 годы), на отраслевой научно-практической конференции молодых специалистов и аспирантов «Молодёжь ЯТЦ: наука, производство, экологическая безопасность» (Железногорск, ФГУП «ГХК», 2015), в ходе заседания Совета по методическому обеспечению радиационной безопасности предприятий Госкорпорации «Росатом» (Озёрск, ФГУП «ПО «Маяк» 2018), а также в

рамках конкурса «Инновационный лидер атомной отрасли-2019» (Москва, Госкорпорация «Росатом», 2019).

Публикации

По теме публикации опубликовано 3 работы; в российских изданиях, рекомендуемых ВАК для защиты кандидатских диссертаций – 2, в зарубежных изданиях, индексируемых в Scopus – 1.

Структура и объем работы

Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения, списка литературы, включающего 78 источников, и приложений, изложена на 154 страницах машинописного текста, содержит 31 рисунок и 12 таблиц.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснованы актуальность выбранной темы исследования, сформулированы цель и задачи, решаемые в диссертации, представлена научная новизна полученных результатов и их практическая значимость.

В первой главе проведен анализ литературы, посвящённой тематике диссертации. Показана значимость существующей проблемы поступления радионуклидов плутония и америция через поврежденные кожные покровы в организм персонала предприятий ядерно-топливного цикла.

Анализ опубликованных моделей биокинетики актинидов в местах ранений показал, что наиболее фундаментальной и проработанной из таких моделей является модель НКРЗ США, публикация №156 (NCRP Report №156, 2007), позволяющая описать биокинетику радионуклидов в местах ранений, переход радионуклидов в кровь и лимфатические узлы. Помимо модели, описывающей поведение радионуклидов в месте повреждения кожных покровов, рассмотрены и существующие общие биокинетические модели, описывающие процесс распространения радионуклидов во внутренних органах и тканях человека. Обобщенное структурное описание рассмотренных моделей – модели НКРЗ США №156 (NCRP Report №156, 2007), объединенной с общими моделями (описывающими обмен плутония), приведёнными в трудах Международной комиссии по радиологической защите – МКРЗ (ICRP Publication 30, 1982; ICRP Publication 67, 1983; ICRP Publication 141, 2019) может быть представлено в графическом виде (Рисунок 1).

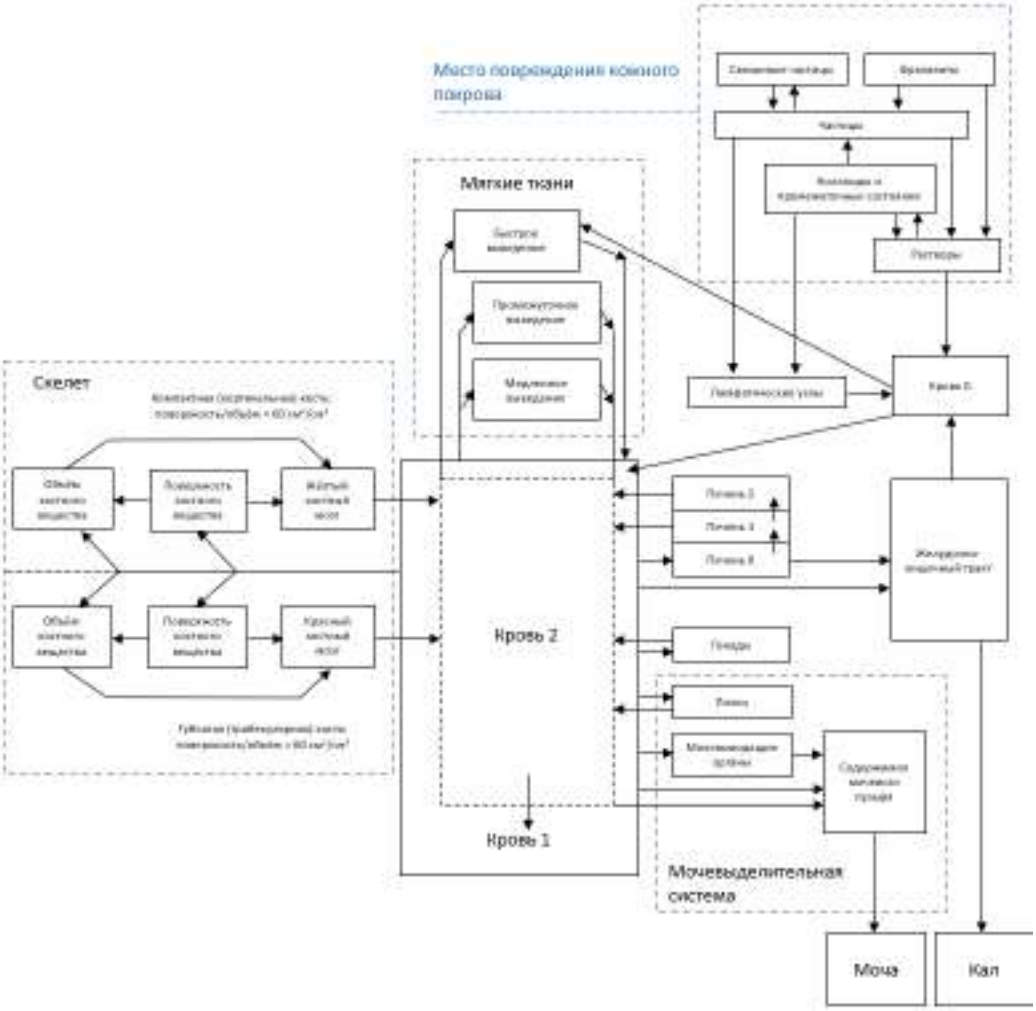

Рисунок 1 – Объединенная структурная схема моделей публикации 156 НКРЗ США (NCRP Report №156, 2007), МКРЗ (Публикации №141) для описания обмена плутония

Вероятность каждого из возможных переходов между камерами моделей может быть описана с использованием понятий периода полувыведения и константы переноса. Значения таких констант для системных моделей МКРЗ определены на основе многолетнего наблюдения за характером процессов удержания радионуклида теми или иными тканями в организме человека. Для модели НКРЗ США (NCRP Report №156, 2007), характеризующей процессы, происходящие в месте повреждения кожного покрова, также представлены аналогичные коэффициенты, однако их определение основывалось на основе фундаментальных экспериментов, проведённых на животных. Таким образом, применение указанной модели для случаев раневого поступления у человека, требует проверки и тщательного статистического анализа.

Еще одним фактором, требующим особого внимания, является программа медицинского сопровождения персонала, имевшего в своем анамнезе случаи поступления радионуклидов плутония через поврежденные кожные покровы. Так как при медицинском вмешательстве у пациентов могут сильно искажаться (Kastl M. Et al., 2014; Seidel A., Volf V., 1972)

естественные процессы обмена радионуклидов, в главе проведён анализ влияния комлексонотерапии (применение комплексов ДТПА [диэтилтриаминпентауксусная кислота], «Пентацин») на ускорение обмена радионуклидов. Комплексонотерапия применяется для снижения патологических рисков при поступлении радионуклидов во внутренние органы и ткани человека. Показано, что применение препарата Са-ДТПА для ускорения выведения америция и плутония из организма существенно изменяет процессы выведения, распространения и отложения радионуклидов во внутренних органах и тканях человека. Таким образом, подобный вклад комплексонотерапии требует модификации существующих моделей, описывающих естественный обмен радионуклидов в организме человека. В настоящей работе рассмотрены две модели, описывающие ускорение выведения радионуклидов из организма человека. В первой модели (Щадилов А.Е., 2010) рассмотрены процессы ускорения выведения радионуклидов плутония из внеклеточных жидкостей и крови. Во второй из рассмотренных моделей (Konzen K., 2014) к упомянутым путям ускорения выведения радионуклидов плутония добавлен дополнительный путь – ускорение выведения из печени.

Несмотря на описание конкретных органов и тканей (депонирующих радионуклиды с различной скоростью) в качестве структурных компонентов «камерных» моделей, анализ нормативной документации (МУ 2.6.1.026-09, МУ 2.6.1.034-2014) показал, что основным путём получения дозиметрической информации является косвенная дозиметрия – метод определения содержания радионуклидов в суточном количестве экскреции пациента. Прямой метод дозиметрических измерений – измерений содержания радионуклидов непосредственно во внутренних органах и тканях является более редким и зачастую игнорируется при оценке общего поступления и ОЭД пациента. Основной проблемой при проведении прямых измерений является отсутствие измеримых гамма-линий у плутония. Оценка содержания плутония в органах и тканях человека может производиться только по результатам измерений его дочернего продукта распада – америция (имеет измеримую гамма-линию 59,6 кэВ).

По результатам обзора литературы выдвинуты основные условия, которые должны быть удовлетворены разрабатываемым в настоящей работе методом. Наиболее полная и точная оценка доз внутреннего облучения при поступлении радионуклидов через поврежденные кожные покровы у работников, занятых на плутониевом производстве, возможна при соблюдении следующих условий:

1. Комбинирование результатов прямых измерений содержания радионуклидов в органах и тканях человека и результатов косвенных измерений содержания радионуклидов в экскреции.
2. Биокинетическая модель, используемая при расчётах дозовых нагрузок, должна учитывать поведение радионуклидов как в месте ранения, так и во внутренних органах и тканях человека.

3. В модели должны быть учтены воздействия основных медицинских процедур по снижению доз внутреннего облучения: внутривенное введение препарата «пентацин» и хирургическое иссечение загрязненных радионуклидами тканей.

4. Модель должна учитывать как особенности поведения радионуклидов плутония, так и его дочернего продукта распада – америция.

5. Прямые измерения содержания радионуклидов в органах и тканях человека должны производиться с использованием высокоточного оборудования, имеющего минимально достижимый нижний предел измерения.

Во второй главе описаны материалы и методы исследования.

Рассмотрен подход, изложенный в международном стандарте ISO 27048:2011 и рекомендациях IDEAS (Castellani C.M. et al., 2013), который позволил использовать различные наборы данных в рамках одной модели. Так, в рекомендациях введено понятие фактора рассеяния, который представляет собой геометрическое стандартное отклонение результатов измерений. Использование значений факторов рассеяния, определённых в международном стандарте 27048:2011, позволило объединить результаты, получаемые в ходе применения различных типов измерений, в рамках одной модели. В рекомендациях IDEAS предложены достаточно эффективные инструменты для проведения анализа используемых моделей с точки зрения их сходимости с результатами наблюдений. Одним из таких инструментов является автокорреляционный анализ. В рамках такого анализа предлагается рассчитывать коэффициент автокорреляции, характеризующий «неслучайность» отклонения измеряемых величин от используемой модели. В случаях, когда биокинетическая модель для оценки поступления выбрана удачно, а отклонения измеряемых величин носят полностью случайный характер, значение коэффициента близки к нолю. Напротив, близость коэффициента автокорреляции к его граничным значениям (1 или -1), свидетельствует о наличии систематической ошибки и несовершенстве используемой модели. В качестве ещё одного статистического инструмента предложено использовать анализ по критерию согласия Пирсона (критерий согласия χ^2). Уравнение для определения параметра χ^2 служит критерием адекватности для применяемой биокинетической модели. Рекомендациями IDEAS предложен следующий механизм для определения плохой корреляции между предлагаемой моделью и регистрируемыми наблюдениями: модель считается слабо соответствующей наблюдаемым показаниям в том случае, если вероятность того, что случайная величина χ^2 для соответствующего числа степеней свободы превышает рассчитанную на основе выполненных измерений значения χ_0^2, равна или меньше 5%.

Во второй главе также рассмотрена методическая проблема громоздкости вычисляемых биокинетических систем уравнений. В главе рассмотрены и выбраны наиболее подходящие для рассматриваемой задачи методы. Решение систем линейных дифференциальных уравнений

потребовало использования численных методов и их программной реализации. Основной средой программирования было выбрано программное обеспечение Microsoft Visual Studio, программирование осуществлялось на языке C#. Для решения систем линейных дифференциальных уравнения были выбраны и реализованы численные методы: метод Рунге-Кутта и метод матричной экспоненты (Birchal A., 1989). Использование таких методов позволило вычислять накапливаемую с течением времени активность радионуклидов в различных камерах модели.

Процесс расчёта параметров модели потребовал применения метода покоординатного спуска. При этом оптимизируемым параметром являлся параметр χ^2. По достижению наименьшего значения указанного параметра делались выводы о наиболее вероятном параметре модели.

Для расчёта дозиметрических параметров рассмотрены принципы, сформулированные в трудах МКРЗ (ICRP Publication 103, 2007, ICRP Publication 130, 2015), предполагающие оценку величин поступления и дозовых коэффициентов для расчёта величин доз внутреннего облучения.

По итогам рассмотрения доступных методов, был разработан основанный на принципе камерных биокинетических моделей методический подход, позволяющий производить уточнение основных параметров таких моделей и выполнять расчёты дозиметрических величин. Подход реализован в виде специализированного программного обеспечения (далее – СПО). Во второй главе приведено описание данного СПО. Общая блок-схема работы СПО представлена на рисунке 2. В главе показаны возможности СПО по расчёту различных дозиметрических величин:

1. Величины критерия χ_0^2 и коэффициента автокорреляции ρ, позволяющие определить применимость используемой модели для рассматриваемого случая;
2. Величины констант переноса моделей (в случаях, если модель требует доработки);
3. Величину поступления радионуклидов америция и/или плутония;
4. Распределение начальных форм (определяемых в соответствии с публикацией № 156 НКРЗ США (NCRP Report №156, 2007) в общей смеси радионуклидов, поступивших в место повреждения кожного покрова;
5. Суммарную ОЭД на последующие 50 лет;
6. Реализованную ОЭД (на каждый год, следующий за поступлением).

Рисунок 2 – блок-схема работы СПО

С целью верификации разработанного методического подхода в СПО для случая единичного поступления радионуклида ^{239}Pu через повреждённые кожные покровы в «сильно-растворимой» форме были проведены расчёты эквивалентных доз на отдельные внутренние органы и ткани человека, а также расчёты дозового коэффициента. Результаты таких расчётов сравнивались с альтернативными результатами для аналогичных начальных условий, полученными в работе (Toohey R.E., 2014). По результатам верификации показано, что расхождение результатов расчёта, выполненных в разработанном СПО, и результатов, полученных с применением альтернативного подхода, не превышало 0,5%

В третьей главе на основе случаев «раневого» поступления, произошедших с работниками АО «СХК» для существующих моделей, предлагаемых в литературе для описания обмена хелатируемых радионуклидов плутония (Щадилов А.Е., 2010; Konzen K., 2014; МУ 2.6.1.026-09, 2009), проведён анализ и сравнение с использованием статистических методов, описанных в предыдущей главе. В анализируемую группу были включены шесть случаев поступления радионуклидов плутония и америция через поврежденные кожные покровы, произошедшие в АО «СХК» в период с 2013 по 2017 годы (некоторые из которых наблюдаются до настоящего времени). В каждом из случаев работнику назначались индивидуальная программа наблюдений, включающая обследование косвенными методами – в ЛДВО (лаборатория дозиметрии внутреннего облучения) ФГБУЗ ЦГиЭ №81 ФМБА России (МИ ФМБА России 1.38.7.60) и прямыми методами – на установках СИЧ АО «СХК»

(МВИ ФР.1.40.2016.23918, 2015; МРК 565-RA.RU.311243-2018/440.122-684, 2018).

По результатам анализа:

1. Показано, что для случаев, наблюдавшихся в АО «СХК», авторская модель Konzen K. (Konzen K., 2014) наилучшим образом описывает обмен хелатируемого плутония.

Ввиду того, что большая часть измерений была представлена суммарным содержанием радионуклидов америция и плутония (вместе ранения или в СКМ), а рассматриваемые модели (Щадилов А.Е., 2010; Konzen K., 2014; МУ 2.6.1.026-09, 2009) предполагают описание обмена одного хелатируемого радионуклида – плутония, при выполнении расчётов в отношении описания обмена америция были приняты следующие допущения: использовалась «стандартная» модель естественного обмена америция, представленная в публикации 141 МКРЗ (ICRP Publication 103, 2019), дополненная камерами, отвечающими за связанные состояния хелатируемого радионуклида Am-ДТПА. В качестве констант переноса для таких камер, отвечающих за связанное состояние Am-ДТПА, использовались константы, аналогичные предложенным в рассматриваемых моделях для описания плутония. Приближение принято ввиду близких свойств плутония и америция при взаимодействии с молекулами ДТПА: образующиеся комплексы имеют схожие константы устойчивости при физиологических условиях (22,9 для америция (Stricklin D. et al, 2014) и 23,4 для плутония (Stricklin D. et al, 2014)).

Результаты статистического анализа каждой из моделей для случаев с наибольшим доступным количеством наблюдений П.В.Г. и К.А.Н. представлены в Таблице 1.

Таблица 1 – Статистический анализ моделей для описания обмена хелатируемого плутония, выполненный для случаев П.В.Г. и К.А.Н.

Анализируемая модель	**Значение нормированного коэффициента хи-квадрат**	**Предельное значение для коэффициента хи-квадрат**	**Значение нормированного коэффициента хи-квадрат**	**Предельное значение для коэффициента хи-квадрат**
	П.В.Г.		**К.А.Н.**	
МУ 2.6.1.026-09, 2009	**1,82**	**1,43**	**8,88**	**1,33**
Щадилов А.Е., 2010	**4,27**	**1,38**	**7,69**	**1,36**
Konzen K., 2014	**1,33**	**1,38**	**0,83**	**1,36**

Из таблицы 1 видно, что наилучшую сходимость с результатами практических наблюдений продемонстрировала авторская модель Konzen K. (Konzen K., 2014): значение нормированного по степеням свободы критерия хи-квадрат для данной модели принимало наименьшие значения.

2. Показано, что представление начальной формы поступления нужно производить в виде смеси форм, предложенных в публикации НКРЗ США №156 (NCRP Report №156, 2007).

В таблице 2 приведены результаты статистического анализа, выполненного для различных условий расчёта начальных форм поступления. Для условий расчёта одной формы поступления выполнялся поочерёдный расчёт значений критерия хи-квадрат для всех доступных (в соответствии с публикацией НКРЗ США №156 (NCRP Report №156, 2007)) форм поступления, после чего в таблицу 2 вносилось наименьшее значение из полученного набора критериев хи-квадрат. Для условий, когда начальное поступление представлялось в виде смеси форм, для величины поступления по каждой из форм производилась оптимизация методом покоординатного спуска путём минимизации критерия хи-квадрат. Суммарное поступление далее рассчитывалось как сумма поступлений каждой из форм.

Например, для случая П.В.Г., расчёт поступления с применением модели Konzen K. (Konzen K., 2014) для условий расчёта одной формы поступления показал одну наиболее вероятную форму радионуклидов - коллоид. Расчёт же смеси начальных форм показал более сложную структуру начального состояния радионуклидов: америций (52% от общего поступления): 57% - сверхсильно удерживаемый раствор, 25% - коллоид, 18% - частица; плутоний (48% от общего поступления): 67% - сверхсильно удерживаемый раствор, 33% - частица.

Таблица 2 – Статистический анализ моделей для различных условий расчёта начальных форм поступления

Анализируемая модель	**Значение нормированного коэффициента хи-квадрат**	**Предельное значение для коэффициента хи-квадрат**	**Значение нормированного коэффициента хи-квадрат**	**Предельное значение для коэффициента хи-квадрат**
	П.В.Г.		**К.А.Н.**	
Щадилов А.Е., 2010, расчёт для одной формы поступления	**5,15**	**1,38**	**8,32**	**1,36**
Щадилов А.Е., 2010, расчёт для смеси форм	**4,27**	**1,38**	**7,69**	**1,36**
Konzen K., 2014, расчёт для одной формы поступления	**1,75**	**1,38**	**0,96**	**1,36**
Konzen K., 2014, расчёт для смеси форм	**1,33**	**1,38**	**0,83**	**1,36**

Из таблицы 2 видно, что представление начального поступления в виде смеси форм, предложенных в публикации НКРЗ США №156 (NCRP Report №156, 2007) позволяет повысить статистическую сходимость модели и наблюдаемых результатов измерений. Такое представление позволяет наиболее точно охарактеризовать особенности перехода радионуклидов из места ранения в кровеносную или лимфатическую системы человека. Обозначенный подход позволяет наиболее корректно отразить

производственные условия, так как радионуклиды на рабочих местах, предполагающих обращение с открытыми источниками, могут быть представлены различным агрегатными состояниями и химическими соединениями.

3. Предложена модель для описания ускорения выведения америция при его хелатировании. Структурная схема модели представлена на рисунке 3, рассчитанные константы переноса приведены в таблице 3.

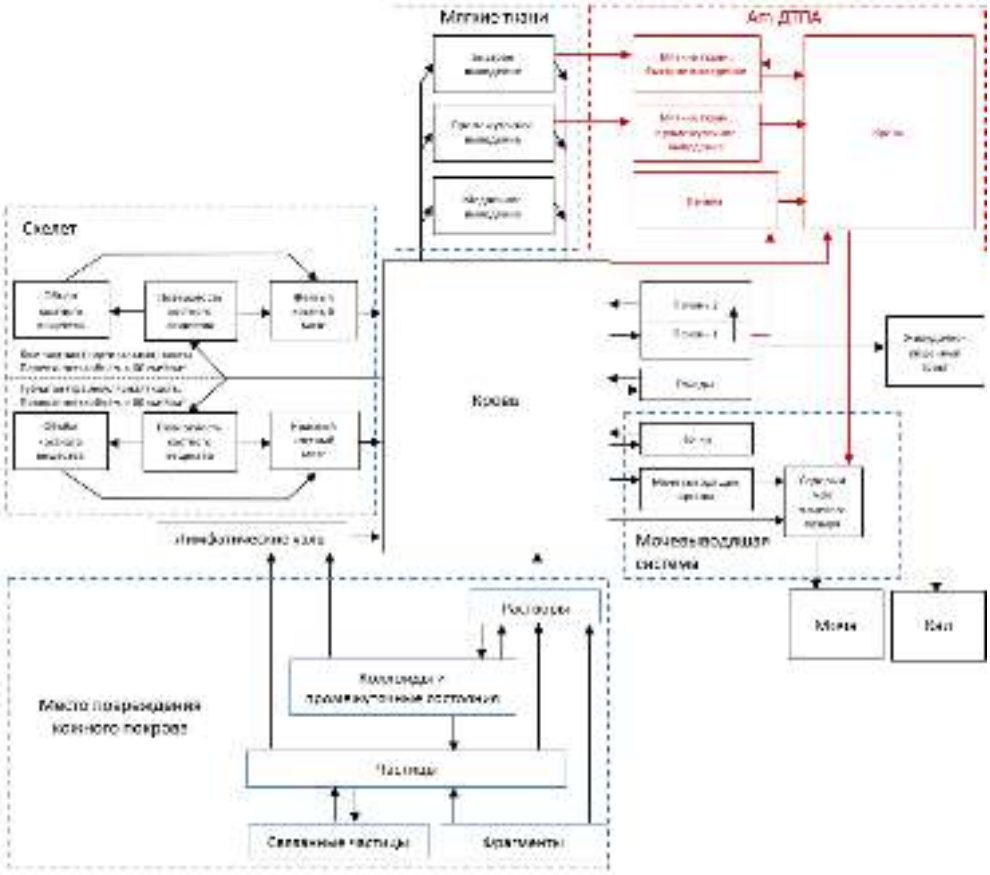

Рисунок 3 – общая модель для описания обмена америция при поступлении через поврежденные кожные покровы под воздействием препарата «пентацин»

Таблица 3 – Константы переноса для модели обмена америция, поступающего через поврежденные кожные покровы и хелатируемого пентацином

Переход между камерами	**Константа переноса, сутки$^{-1}$**	**Доверительный интервал, сутки$^{-1}$ (p=0,95)**	**Переход между камерами**	**Константа переноса, сутки$^{-1}$**	**Доверительный интервал, сутки$^{-1}$ (p=0,95)**
Кровь (Am) → Кровь (Am-ДТПА)	1099	[846,23; 2011,17]	Кровь (Am-ДТПА) → МТ0 (Am-ДТПА)	902	[694,54; 1650,66]
МТ0 (Am) → МТ0 (Am-ДТПА)	2911	[2241,47; 5327,13]	Печень 1 (Am-ДТПА) → Кровь (Am-ДТПА)	0,27	[0,21; 0,49]
МТ1 (Am) → МТ1 (Am-ДТПА)	1,08	[0,83; 1,98]	МТ0 (Am-ДТПА) → Кровь (Am-ДТПА)	12,62	[9,72; 23,09]

Переход между камерами	Константа переноса, сутки$^{-1}$	Доверительный интервал, сутки$^{-1}$ (p=0,95)	Переход между камерами	Константа переноса, сутки$^{-1}$	Доверительный интервал, сутки$^{-1}$ (p=0,95)
Печень 1 (Am) → Печень 1 (Am-ДТПА)	1,50	[1,16; 2,75]	МТ1 (Am-ДТПА) → Кровь (Am-ДТПА)	0,05	[0,04; 0,09]
Кровь (Am-ДТПА) → Моча	331	[254,87; 605,73]	-	-	-

В рамках данной модели для описания поведения хелатируемого америция предложено ввести четыре дополнительных камеры, отвечающих за расположение связанного комплекса Am-ДТПА в крови, мягких тканях (быстрая и промежуточная скорости выведения) и печени. Модель естественного обмена америция, приведённая в публикации №141 МКРЗ (ICRP Publication 141, 2019), была дополнена моделью публикации №156 НКРЗ США (NCRP Report №156, 2007) для описания поведения радионуклидов в месте повреждения кожного покрова.

Определение констант переноса, представленных в таблице 3, производилось метом покоординатного спуска путем минимизации критерия хи-квадрат. В качестве начальных данных для определения соответствующих констант переноса использовались коэффициенты, предложенные K. Konzen для плутония. Оптимизация производилась одновременно, по результатам наблюдений случаев П.В.Г. и К.А.Н. После каждой итерации по оптимизации коэффициентов модели, производился перерасчет наиболее вероятной смеси базовых форм, характеризующей поступление из раны в кровь.

На рисунках 4, 5 представлены графические сравнения данных, полученных расчетным путем с применением предложенной в настоящей работе моделью, и практических данных, включающих результаты проведенных в АО «СХК» измерений по работникам П.В.Г. и К.А.Н.

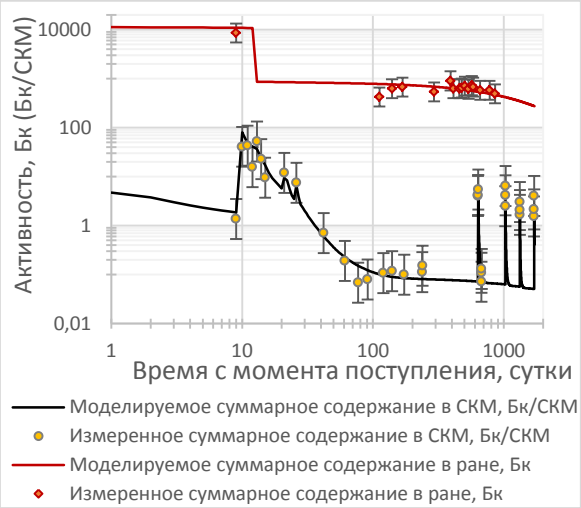

Рисунок 4 – сравнение моделируемых значений содержания радионуклидов америция и плутония в камерах модели и фактических результатов измерений для случая П.В.Г.

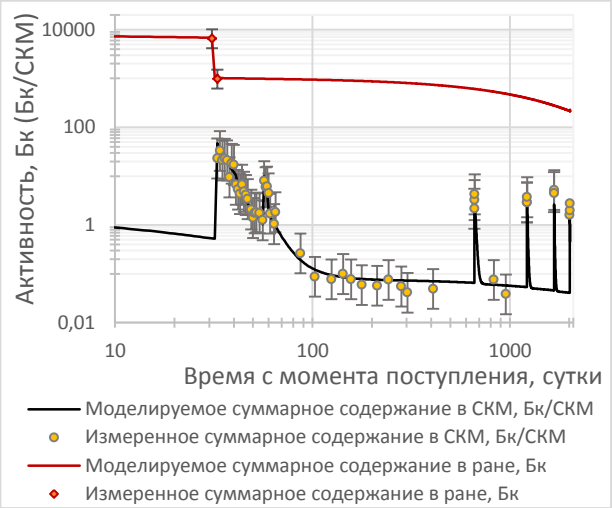

Рисунок 5 – сравнение моделируемых значений содержания радионуклидов америция и плутония в камерах модели и фактических результатов измерений для случая К.А.Н.

Так как с 2019 года в АО «СХК» введена в эксплуатацию установка Canberra C2275-BE6530-CP5, позволяющая производить прямые измерения содержания радионуклидов во внутренних органах и тканях, оказалось возможным произвести сравнение моделируемых значений содержания америция в печени и лимфатических узлах с результатами практических измерений. Результаты данного сравнения для случая с П.В.Г. представлены графически на рисунках 6, 7. График, содержащий моделируемое содержание америция в печени, также дополнен результатами измерений на установке СИЧ ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России, произведённых в первые дни после выявления данного случая.

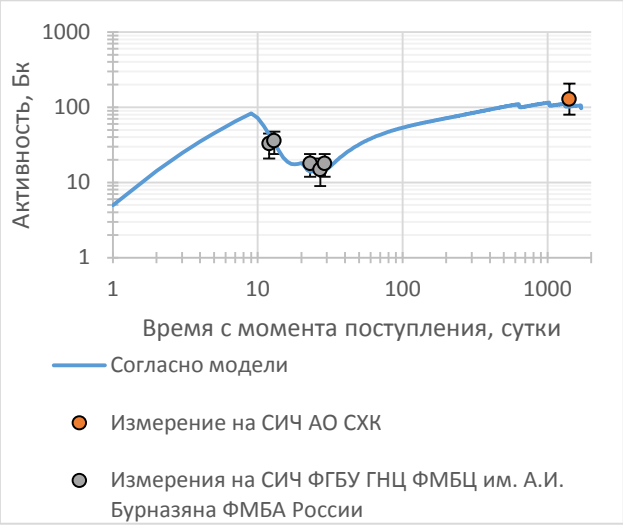

Рисунок 6 – содержание Am в печени пациента П.В.Г.

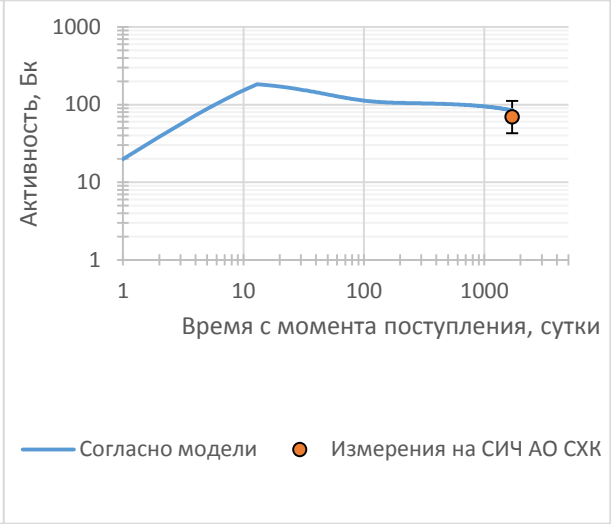

Рисунок 7 – содержание Am в подмышечных лимфатических узлах пациента П.В.Г.

Из графиков видно, что содержание америция в печени и лимфатических узлах, рассчитанное с помощью предлагаемой модели, хорошо коррелирует с результатами практических измерений. Моделируемое содержание америция в камерах «печень» и «лимфатические узлы» попадает в доверительный интервал результатов единичных измерений. Данный факт не только подтверждает соответствие предлагаемой модели наблюдаемым значениям, но и свидетельствует о возможности использования результатов прямых измерений содержания америция во внутренних органах и тканях для расчёта доз внутреннего облучения при «раневом» пути поступления.

В третьей главе показано, что объединение предлагаемой в настоящей работе модели для описания обмена хелатируемого америция с авторской моделью, предложенной K.Konzen (Konzen K., 2014), описывающей обмен хелатируемого плутония, позволяет удовлетворить различные статистические проверки и может быть использовано для описания случаев внутреннего поступления радионуклидов америция и плутония во внутренние органы и ткани человека. Верификация такой объединённой модели заключалась в проведении анализа по критерию согласия и автокорреляционного анализа. Результаты представлены в таблицах 4, 5, из

которых видно, что модель прошла статистические тесты для всех рассмотренных случаев (р-уровень значимости > 0,05).

Таблица 4 – Анализ модели по критерию согласия

Случай / Параметр	П.В.Г.	К.А.Н.	Л.А.С.	Б.С.С.	К.А.В.	В.А.А.
Значение нормированного критерия хи-квадрат	**1,08**	**0,78**	**1,51**	**1,33**	**0,83**	**0,54**
Р-уровень значимости	**0,34**	**0,87**	**0,09**	**0,22**	**0,54**	**0,96**

Таблица 5 – Автокорреляционный анализ

Случай / Параметр	П.В.Г.	К.А.Н.	Л.А.С.	Б.С.С.	К.А.В.	В.А.А.
Значение коэффициента автокорреляции	**0,19**	**0,14**	**0,25**	**-0,02**	**-0,22**	**-0,26**
Верхний предел коэффициента автокорреляции	**0,19**	**0,18**	**0,29**	**0,32**	**0,32**	**0,26**

В четвертой главе приведено описание разработанной в рамках настоящей работы методики радиационного контроля. Приведены практические рекомендации в отношении организации системы контроля и дозиметрического сопровождения работников предприятий, в отношении которых выявлены случаи поступления радионуклидов америция и плутония через повреждённые кожные покровы. Система контроля представлена последовательностью действий по выявлению таких случаев, порядком выполнения измерений и расчётов дозиметрических величин.

Общая блок-схема разработанной в рамках настоящей работы методики радиационного контроля представлена на рисунке 8. В общем виде методика представляет собой порядок организационных действий, направленных на:

- выявление случаев поступления радионуклидов америция и плутония через повреждённые кожные покровы
- дозиметрическое сопровождение выявленных случаев;
- использование расчётного комплекса, представленного разработанным в рамках настоящей работы СПО, для определения необходимых с дозиметрической точки зрения параметров.

В данной главе была использована следующая терминология: индивидуальный дозовый коэффициент – дозовый коэффициент, рассчитанный для пациента индивидуально, на основе назначенной ему программы медицинского сопровождения с учётом эффективности применения данной программы; реализованная эффективная доза (далее – ЭД) – величина эффективной дозы внутреннего облучения, которая будет получена человеком в течение календарного года за счет поступления радионуклидов через поврежденный кожный покров. Использование таких понятий для анализа дозовых нагрузок на человека представляется

обоснованным в тех случаях, когда учитываются положительные эффекты от индивидуального медицинского сопровождения пациента.

В главе также приведено описание подхода к оценке неопределённости результатов измерений, который был интегрирован в СПО. Оценку неопределённости расчёта величин поступления, ОЭД и реализованной ЭД предложено осуществлять на основе предположения о логарифмически нормальном распределении результатов измерений. Учитывая, что фактор рассеяния K_{SF_i} представляет собой геометрическое стандартное отклонение, оценка доверительного интервала результата измерения *M* для доверительной вероятности p=0,95 может осуществляется по формуле *(1)*:

$$M_i^{max/min} = M_i \cdot K_{SF_i}^{\pm 1,96} \approx M_i \cdot K_{SF_i}^{\pm 2} \qquad (1)$$

Использование формулы *(1)* позволяет производить оценку верхнего и нижнего значений доверительного интервала для величины поступления *I*, которая может быть сведена к следующему выражению:

$$I^{max/min} = Exp\left[\frac{\sum_{i=1}^{N} \frac{ln\left(M_i^{max/min} / m(t_i)\right)}{\left[ln\left(K_{SF_i}\right)\right]^2}}{\sum_{i=1}^{N} \frac{1}{\left[ln\left(K_{SF_i}\right)\right]^2}}\right], \qquad (2)$$

где $m(t_i)$ – рассчитываемая индивидуально для каждого случая функция удержания (выведения) в соответствующей измерению камере модели.

Аналогично *(2)* для оценки доверительного интервала величины ОЭД или реализованной ЭД предложено использовать выражение *(3)*:

$$E^{max/min} = \varepsilon \cdot I^{max/min}, \qquad (3)$$

где ε – индивидуальный дозовый коэффициент, определяемый либо на 50 лет (для расчёта полной ОЭД), либо на календарный год (для расчёта реализованной ЭД).

Для разработанной методики радиационного контроля проведена верификация:

1. 4 из 6 описанных в работе случаев поступления радионуклидов америция и плутония через повреждённые кожные покровы были выявлены после приведения системы контроля и дозиметрического сопровождения работников АО «СХК» в соответствие предлагаемому в настоящей работе методу. Без введения периодического контроля на предмет случаев «раневого» поступления эти случаи моги остаться незамеченными, либо быть замеченными в более позднее периоды и привести к увеличению дозовых нагрузок работников.

2. Для каждого из описанных в настоящей работе случаев выполнена оценка величин поступления и реализованных ЭД, включающая оценку неопределённости для данных величин. Результаты расчёта

реализованных ЭД (на первый год после поступления) для случаев, произошедших в АО «СХК» представлены в таблице 6.

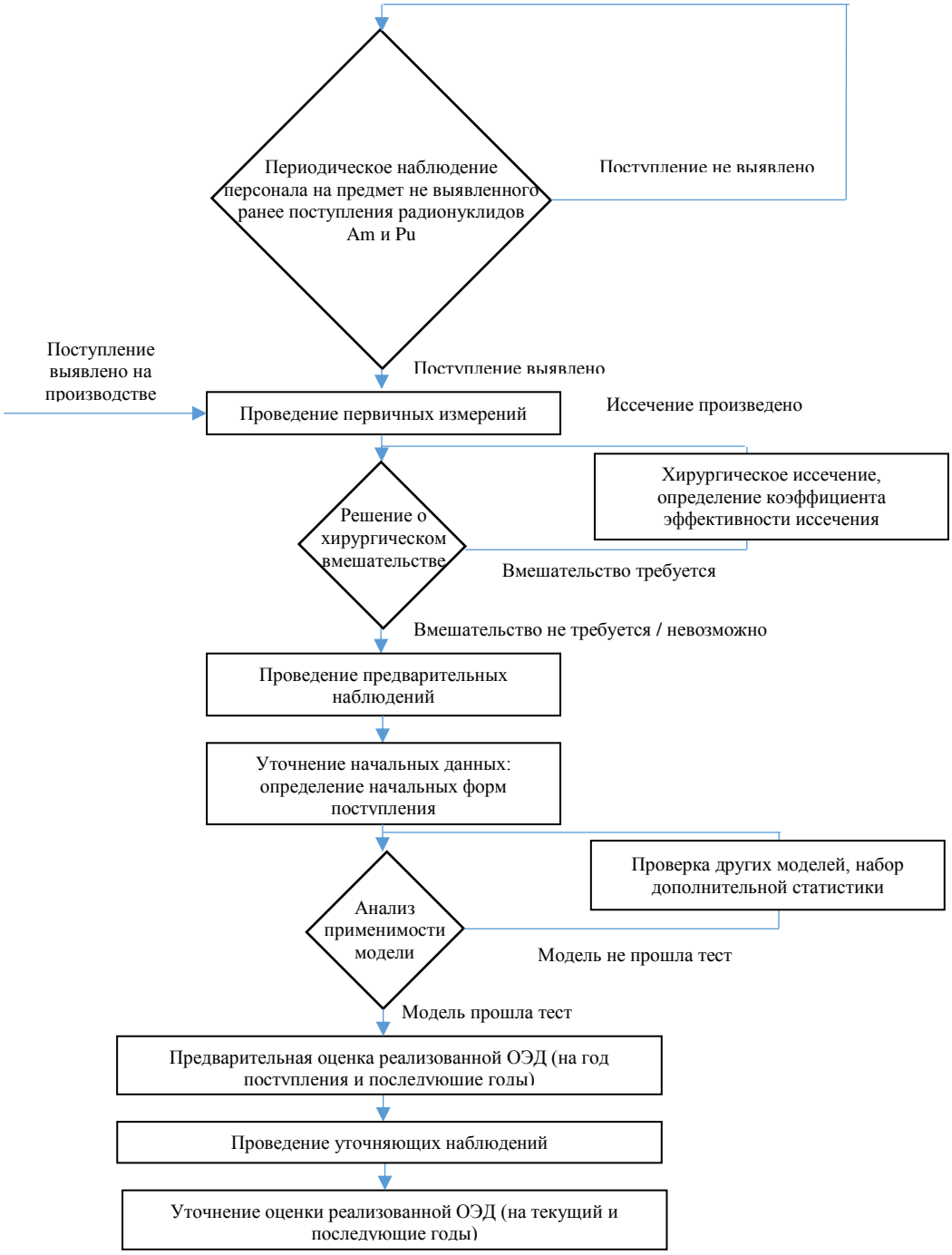

Рисунок 8 – общая блок-схема МРК

Таблица 6 – Расчёт дозиметрических параметров с применением предлагаемого метода

Рассматриваемый случай	**Л.А.С.**	**К.А.В.**	**Б.С.С.**	**П.В.Г.**	**К.А.Н.**	**В.А.А.**
Реализованная ЭД (на первый год после поступления), мЗв	**0,06**	**0,04**	**0,91**	**12,25**	**14,62**	**0,30**

Доверительный интервал для значений реализованной ЭД (p=0,95), мЗв	**[0,05; 0,07]**	**[0,03; 0,05]**	**[0,75; 1,12]**	**[10,28; 14,41]**	**[10,15; 20,61]**	**[0,26; 0,34]**

ВЫВОДЫ

1. Разработан подход для уточнения основных параметров моделей и расчёта дозиметрических величин.

1.1. Для реализации разработанного методического подхода разработано СПО, позволяющее производить необходимые с дозиметрической точки зрения расчёты. Показано, что возможности СПО позволяют реализовывать гибкий подход при оценке дозиметрических величин, учитывающий индивидуальность и эффективность применяемых медицинских процедур по снижению доз внутреннего облучения.

2. Для разработанного СПО проведена верификация, включившая сравнение результатов расчёта в СПО дозового коэффициента для естественного обмена плутония с альтернативными расчётами, выполненными в работе (Toohey R.E., 2014). По результатам верификации показано, что расхождение результатов составило не более 0,5%.

3. Впервые предложена модель для описания обмена хелатируемого америция, поступившего вместе с радионуклидами плутония во внутренние органы и ткани человека через повреждённые кожные покровы.

3.1. Предложенная модель включила в себя камеры, отвечающие за присутствие связанных комплексоном ДТПА радионуклидов в том или ином органе человека, а также константы переноса, отвечающие за переходы между перечисленными камерами. Модель включает в себя камеры: «кровь» (кровь Am-ДТПА), «мягкие ткани: быстрое выведение» (MT0 Am-ДТПА), «мягкие ткани: промежуточное выведение» (MT1 Am-ДТПА), «печень» (печень Am-ДТПА). Константы переноса представлены в таблице 3.

3.2. Проведено сравнение нескольких моделей, описывающих обмен хелатируемого плутония (Щадилов А.Е., 2010; Konzen K., 2014; МУ 2.6.1.026-09, 2009). В результате статистического анализа определена модель, показывающая наилучшие результаты статистических тестов – авторская модель обмена хелатируемого плутония, предложенная K. Konzen (Konzen K., 2014).

3.3. Объединение предложенной в настоящей работе модели для описания обмена хелатируемого америция и авторской модели K. Konzen (Konzen K., 2014) для описания обмена хелатируемого плутония позволяет производить комплексный анализ данных (результатов прямых и косвенных измерений).

3.4. Показано, что представление начальной формы поступления нужно производить в виде смеси форм, предложенных в публикации НКРЗ США №156 (NCRP Report №156, 2007). Такое представление позволяет наиболее точно охарактеризовать особенности перехода радионуклидов из места ранения в кровеносную или лимфатическую системы человека.

Обозначенный подход позволяет наиболее корректно отразить производственные условия, так как радионуклиды на рабочих местах, предполагающих обращение с открытыми источниками, могут быть представлены различным агрегатными состояниями и химическими соединениями.

3.5. Верификация предложенной модели для описания обмена хелатируемого америция на примере шести случаев, произошедших в АО «СХК», показала удовлетворительные результаты в ходе проведения статистической проверки модели по критерию согласия хи-квадрат, а также по результатам проведения автокорреляционного анализа.

4. Разработан и описан метод радиационного контроля, позволяющий осуществлять комплексный дозиметрический анализ.

4.1. Для организации последовательного выявления и дозиметрического сопровождения случаев поступления радионуклидов через повреждённые кожные покровы предложены и обоснованы рекомендации по выбору контрольной группы персонала, периодичности и порядку контроля данного персонала.

4.2. Для выполнения комплексного анализа данных описан порядок оценки величин поступления радионуклидов америция и плутония, дозового коэффициента (индивидуально для каждого случая), ожидаемой (в том числе и реализованной на каждый календарный год, последующий за поступлением) эффективной дозы, а также начальной формы (определённой в соответствии с положениями публикации №156 НКРЗ, США (NCRP Report №156, 2007) или смеси форм радионуклидов, поступивших в место повреждения кожного покрова в начальный момент времени.

4.3. Верификация разработанного метода радиационного контроля произведена на примере шести случаев, произошедших в АО «СХК». По результатам верификации показана принципиальная возможность применения разработанного метода для своевременного выявления обозначенных случаев и проведения для них комплексного анализа дозиметрических данных.

СПИСОК РАБОТ, ОПУБЛИКОВАННЫХ ПО ТЕМЕ РАБОТЫ

1. Ovchinnikov A.V., Izmestyev K.M., Demyanyuk D.G., Krivoshein D.D., Poluektov S.Yu.. The Organization of the Internal Irradiation Monitoring System in Conditions of Nonstandard Radionuclide Intakes, IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering 135 (2016) 012034

2. Богданов И.М., Зайцев Е.П., Овчинников А.В., Кривошеин Д.Д., Изместьев К.М., Организация системы контроля и вопросы медико-санитарного сопровождения персонала в условиях поступления радионуклидов плутония и америция через повреждённые кожные покровы / Медицина экстремальных ситуаций. Научно-практический рецензируемый журнал ФМБА России, 2018 (март).

3. Изместьев К.М., Овчинников А.В. Анализ поступления радионуклидов Am и Pu через повреждённые кожные покровы работников

АО "СХК" с точки зрения биокинетической модели, приведённой в публикации №156 НКРЗ / Вопросы радиационной безопасности, №1, Озёрск, 2018