

УДК 546.799.4
© 2007

**АНАЛИЗ ДИНАМИКИ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА АКТИНИДОВ,
ПОСТУПАВШИХ В ОРГАНИЗМ РАБОТНИКОВ ПО “МАЯК”
В ПЕРИОД 1949–2000 гг.**

*В.В. Хохряков, В.Ф. Хохряков, К.Г. Сулова, А.Б. Соколова
Россия, г. Озерск, Южно-Уральский Институт Биофизики*

Предложена методика расчета содержания изотопа ^{241}Pu по данным повторного измерения ^{241}Am . Расчеты, основанные на данных повторного радиохимического анализа образцов скелетной ткани, показали растущую во времени относительную роль ^{238}Pu и эндогенного ^{241}Am при формировании доз от инкорпорированных актинидов.

Анализ динамики соотношения актинидов в пробах воздуха рабочих помещений и в образцах биосубстратов, взятых при биофизическом обследовании персонала ПО “Маяк”, свидетельствует о возрастающем во времени удельном вкладе альфа-активности ^{241}Am в общую альфа-активность актинидов [1].

С точки зрения дозиметрии инкорпорированных актинидов различают два типа ^{241}Am : экзогенный, т.е. часть радионуклида, поступающая в организм из окружающей среды, и эндогенный – та часть ^{241}Am , которая образуется при бета-распаде изотопа ^{241}Pu , отложившегося в органе ранее при поступлении с другими изотопами плутония. Биокинетика двух типов америция различается: экзогенный следует метаболизму ^{241}Am , тогда как обмен эндогенной части тесно связан с судьбой ^{241}Pu , отличающегося другими радиологическими свойствами. Изучение динамики соотношения изотопного и радионуклидного состава инкорпорированных актинидов в органах и тканях важно для разработки корректного метода контроля внутреннего облучения персонала ПО “Маяк”. Существующий на сегодня методический уровень биофизической лаборатории ЮУрИБФ позволяет производить посмертный альфа-спектрометрический анализ органов и тканей умерших работников ПО “Маяк” на содержание ^{241}Am и альфа-излучающих изотопов плутония, но не освоена методика для измере-

ния низкоэнергетического бета-излучающего ^{241}Pu . Уровень активности последнего, играющего определенную роль в формировании эндогенного ^{241}Am , можно оценить, сравнивая результаты повторного измерения ^{241}Am в одной и той же пробе, выполненные спустя несколько лет. Настоящее сообщение посвящено посмертному анализу нуклидного и изотопного состава актинидов в образцах скелета путем сравнения результатов измерений ^{241}Am , выполненных повторно с перерывом в несколько десятилетий, на основании которых определены содержание и бета-активность ^{241}Pu .

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Использованы результаты измерений активности ^{241}Am и альфа-излучающих изотопов Pu в образцах костей, взятых при аутопсии 12 бывших работников ПО “Маяк”, умерших в 1973–1993 гг. Ингаляционное поступление Am и изотопов Pu в организм указанных работников происходило в разные периоды и во время проведения различных работ в контакте с промышленными альфа-излучающими аэрозолями. Начало воздействия имело место несколько десятков лет назад, в 1949–1959 гг. Радиохимические измерения альфа-активности Am и Pu в зольных остатках костей проводили дважды: сразу после смерти и повторно в 2005–2007 гг., т.е. через 13–32 года после 1-го измере-

ния. Удельную активность радионуклидов измеряли в образцах 2-х костей: затылочной кости черепа и позвонках (грудном и поясничном) или ребрах. Пробы озоляли в муфеле при 600 °С. При радиохимическом анализе для отдельного определения активности Am и Pu в золе костей использовали комбинацию анионообменного и экстракционных методов. Первое (в год смерти) измерение активности ^{241}Am и суммы альфа-активных изотопов плутония $^{238,239,240}\text{Pu}$ проводили, применяя для разделения радионуклидов анионит марки ВП-1АП и экстракцию Am с помощью Д2ЭГФК. Америций в реэкстракте и плутоний в десорбате соосаждали с фосфатом висмута и измеряли альфа-активность сцинтилляционным методом после смешивания осадка со сцинтиллятором (ZnS) на низкофоновом альфа-радиометре (фон – не более $8 \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}$, эффективность 95 %). Минимальная детектируемая активность (МДА) радионуклидов в пробе составляла 5 МБк с погрешностью $\pm 50 \%$.

При повторном определении (2005–2007 гг.) содержания ^{241}Am и изотопов Pu в зольных остатках тех же образцов использовали альфа-спектрометрический метод измерения активности ^{241}Am и изотопов плутония – ^{238}Pu и $^{239,240}\text{Pu}$ – на спектрометре EG&G OSTETE (фон – не более $1,2 \cdot 10^{-5} \text{ с}^{-1}$, эффективность 25 %, разрешение 25 кэВ). В золу вводили метки ^{242}Pu и ^{243}Am и после радиохимического разделения радионуклидов на анионите марки Био-rad для выделения Am использовали экстракцию с Д2ЭГФК в комбинации с ионным обменом. Препараты для измерения готовили методом электролитического осаждения на металлические диски диаметром 18 мм. МДА ^{241}Am и изотопов плутония составляла 1 МБк с погрешностью 60 %. Активность ^{241}Am изотопов плутония – ^{238}Pu и $^{239,240}\text{Pu}$ относили к массе растворенного зольного остатка костей, рассчитывая, таким образом, удельную активность радионуклидов ($\text{Бк} \cdot \text{г}^{-1}$ золы) [2].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Как отмечалось выше, активность ^{241}Pu , формирующего накопление эндогенного ^{241}Am , оценивали на основе результатов измерений содержания ^{241}Am , проведенных в одном и том же образце дважды.

Введем обозначения:

$\lambda_a = 0,0016 \text{ лет}^{-1} = 5,13 \cdot 10^{-11} \text{ сек}^{-1}$ – постоянная распада ^{241}Am [3];

$\lambda_p = 0,046 \text{ лет}^{-1} = 1,53 \cdot 10^{-9} \text{ сек}^{-1}$ – постоянная распада ^{241}Pu [3];

$n(t)$ – зависимость от времени числа атомов ^{241}Pu в образце;

n_0 – число атомов ^{241}Pu в органе к моменту $t = 0$ (показатель не измерялся, подлежит расчетной оценке);

$a(t)$ – зависимость от времени числа атомов ^{241}Am в образце;

a_0 – число атомов ^{241}Am в органе к моменту $t = 0$ (дата смерти).

В промежутке между первым и повторным измерениями образца ткани за t лет происходило одновременно два процесса: радиоактивный распад ^{241}Am и пополнение этого изотопа вследствие бета-распада ^{241}Pu , что описывается уравнением:

$$\begin{aligned} \frac{dn(t)}{dt} &= -\lambda_p n(t) \\ \frac{da(t)}{dt} &= -\lambda_a a(t) + \lambda_p n_0 e^{-\lambda_p t} \end{aligned} \quad (1)$$

которое при начальном условии $a(t=0) = a_0$ имеет решение:

$$\begin{aligned} a(t) &= a_0 \exp(-\lambda_a t) + n_0 \left(\frac{\lambda_p}{\lambda_a - \lambda_p} \right) \times \\ &\times [\exp(-\lambda_p t) - \exp(-\lambda_a t)] \end{aligned} \quad (2)$$

Первое слагаемое уравнения (2) описывает снижение содержания ^{241}Am в измеряемом образце за счет радиоактивного распада в период между первым и повторным измерениями, второе слагаемое отвечает пополнению ^{241}Am за счет радиоактивного превращения ^{241}Pu в указанный промежуток времени t . Последнее означает, что находящийся в депо фиксации ^{241}Pu постоянно в течение жизни может способствовать наращиванию мощности дозы за счет образования дочернего ^{241}Am .

Из (2) следует выражение для расчета содержания атомов ^{241}Pu в образце ткани:

$$\begin{aligned} n_0 &= [a(t) - a_0 \exp(-\lambda_a t)] \times \\ &\times \frac{1}{\left(\frac{\lambda_p}{\lambda_a - \lambda_p} \right) [\exp(-\lambda_p t) - \exp(-\lambda_a t)]} \end{aligned} \quad (3)$$

Используя данные табл. 1 о длительности промежутков времени t между первым и вторым измерениями, а также материалы табл. 2, можно рассчитать по этой формуле n_0 – количество атомов ^{241}Pu в образце, соответствующее моменту времени первого измерения. Результаты

расчетов для каждого индивида приведены в табл. 4 в виде удельной активности $n_0 \lambda_p$ (пКи/г) и соответствующей массовой концентрации (мг/г образца).

Выражение (2) обладает максимумом в некоторый момент времени t_{\max} , который можно

Таблица 1

Кодовый номер индивидуума (ID_L3), даты (годы) начала и окончания профессионального контакта с промышленными альфа-излучающими аэрозолями

№ п/п	ID_L3	Год начала воздействия	Год окончания воздействия	Время от начала воздействия до смерти, лет	Время между двумя измерениями, лет	t_{\max}
1	7929	1949	1961	33	23	51
2	9423	1953	1965	40	14	50
3	8641	1958	1990	33	15	41
4	9224	1958	1981	23	26	49
5	9101	1949	1969	43	13	31
6	8269	1949	1954	33	23	41
7	7939	1949	1956	26	31	53
8	8302	1949	1960	27	31	60
9	9294	1959	1973	14	32	52
10	8031	1951	1973	22	32	63
11	8961	1950	1972	23	32	61
12	8237	1956	1974	18	31	41

Таблица 2

Результаты измерения удельной активности и массовой концентрации ^{241}Am в образцах скелета

№ п/п	ID_L3	Первое измерение		Второе измерение	
1	7929	5,0	$1,4 \cdot 10^{-9}$	12	$3,5 \cdot 10^{-9}$
2	9423	1,5	$4,3 \cdot 10^{-10}$	3,0	$8,6 \cdot 10^{-10}$
3	8641	0,6	$1,9 \cdot 10^{-10}$	1,0	$3,0 \cdot 10^{-10}$
4	9224	0,6	$1,6 \cdot 10^{-10}$	1,3	$3,8 \cdot 10^{-10}$
5	9101	5,0	$1,5 \cdot 10^{-9}$	6,6	$1,9 \cdot 10^{-9}$
6	8269	8,3	$2,4 \cdot 10^{-9}$	15	$4,3 \cdot 10^{-9}$
7	7939	1,5	$4,3 \cdot 10^{-10}$	4,2	$1,2 \cdot 10^{-9}$
8	8302	1,3	$3,7 \cdot 10^{-10}$	5,4	$1,6 \cdot 10^{-9}$
9	9294	0,8	$2,2 \cdot 10^{-10}$	2,1	$6,0 \cdot 10^{-10}$
10	8031	2,7	$7,7 \cdot 10^{-10}$	15	$4,4 \cdot 10^{-9}$
11	8961	1,4	$3,9 \cdot 10^{-10}$	6,2	$1,8 \cdot 10^{-9}$
12	8237	3,7	$1,1 \cdot 10^{-9}$	7,0	$2,0 \cdot 10^{-9}$

рассчитать из равенства $\frac{da(t)}{dt}=0$. Соответствующие выкладки приводят к выражению:

$$t_{\max} = \frac{1}{\lambda_a - \lambda_p} \ln \left[\frac{\lambda_a}{\lambda_p} - \frac{A_0}{N_0} \frac{(\lambda_a - \lambda_p)}{\lambda_p} \right] \quad (4)$$

где $A_0 = a_0 \lambda_p$ – активность ^{241}Am к моменту первого измерения;

$N_0 = n_0 \lambda_a$ – активность ^{241}Pu к моменту первого измерения.

Из выражения (4) следует, что, если активность ^{241}Pu при первом измерении N_0 была много выше активности ^{241}Am (т.е. $A_0/N_0 \rightarrow 0$), то имеет место приближенная формула:

$$t_{\max} = \frac{1}{\lambda_p - \lambda_a} \ln \frac{\lambda_a}{\lambda_p} \approx 73, \text{ лет} \quad (5)$$

Если активности материнского и дочернего радионуклидов мало различаются по величине, то, представляя их отношение как $A_0/N_0 = 1 + \delta$, из (3) находим:

$$t_{\max} = \frac{1}{\lambda_p - \lambda_a} \ln \frac{1}{1 + \delta^*}, \quad (6)$$

где $\delta^* = \delta \frac{\lambda_a - \lambda_p}{\lambda_p} \cong \delta$.

При $\delta > 0$ (когда активность ^{241}Am превышает активность ^{241}Pu) из (6) следует отрицательное значение t_{\max} , не имеющее смысла, что означает отсутствие максимума для ^{241}Am .

При $\delta \leq 0$, по мере приближения активности ^{241}Pu к величине активности ^{241}Am , промежутку времени t_{\max} до наступления максимума сокращается и стремится к нулю.

При равенстве активностей увеличение дозы за счет радиоактивного превращения ^{241}Pu в ^{241}Am невозможно. Данный вывод относится к процессам, протекающим в отобранных образцах тканей (*in vitro*). Изменение соотношения активности рассматриваемых нуклидов в органах и тканях живого организма представляет собой более сложный процесс, описание которого должно учитывать метаболическую составляющую (обмен в органах и тканях, а также системную экскрецию радиоактивных веществ).

В табл. 1 приведены рассчитанные значения t_{\max} для каждого из 12 исследованных слу-

чаев. Во всех случаях t_{\max} меньше предельного значения 76 лет, вытекающего из формулы (5), что свидетельствует о более высокой активности ^{241}Pu по сравнению с активностью ^{241}Am и указывает на растущую мощность дозы в изолированных образцах в период $t < t_{\max}$ для каждого индивида.

В табл. 1 также приведены индивидуальные кодовые номера, применяемые в лаборатории внутренней дозиметрии (ID_L3), указаны даты (годы) начала и окончания профконтакта и длительность промежутка времени t между первым и вторым исследованиями. Эта информация использована для анализа данных других таблиц. В табл. 2 приведены данные радиохимического определения удельной активности Q ^{241}Am (пКи/г) в образцах скелета 12 бывших работников ПО "Маяк", полученные при первом измерении (т.е. на момент смерти) и повторном анализе аликвот тех же образцов, выполненном спустя 13,4–31,5 лет. Там же представлены значения массовых концентраций M (мг/г) для ^{241}Am , рассчитанные по данным об удельной активности Q в соответствии с выражением:

$$M = (Q/\lambda_a)(241/6,02 \cdot 10^{23}) \cdot 10^{-3} \text{ (мг/г)},$$

где Q/λ_a – число атомов ^{241}Am в измеренном образце;

241(г/моль) для ^{241}Am ;

$6,02 \cdot 10^{23}$ (число атомов в 1 моле, число Авогадро).

По этой же формуле с учетом соответствующих значений постоянных распада и г/молей рассчитаны массы изотопов плутония в исследованных образцах по их активности, приведенные в табл. 3.

Сравнительный анализ данных, приведенных в табл. 1–4, для индивидов, проработавших разные сроки на предприятии, выявил, что по мере возрастания даты окончания профконтакта с радионуклидами доля ^{241}Am , ^{238}Pu , ^{241}Pu в общей массе актинидов растет. Эта тенденция наглядно представлена графиками на рис. 1–3.

На графике рис. 1 показано, что тренд к увеличению доли ^{241}Am по мере роста даты окончания работы выражается уравнением линейной регрессии, с коэффициентом ежегодного прироста 0,0035 % год⁻¹ при достоверном уровне значимости ($p=0,01$). К 2000 году доля ^{241}Am достигла значения около 0,15 %. Альфа-

Таблица 3

Результаты измерения активности и массовой концентрации изотопов Pu в образцах скелета

№ п/п	ID_L3	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu		²³⁸ Pu		
		Удельная активность, пКи/г	Масса ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu в 1 г образца, мг/г	Удельная активность, пКи/г	Доля от общей активности изотопов, %	Масса ²³⁸ Pu в 1 г образца, мг/г
1	7929	410	6,6·10 ⁻⁶	3,3	0,8	1,9·10 ⁻¹⁰
2	9423	61	9,8·10 ⁻⁷	0,8	0,1	4,9·10 ⁻¹¹
3	8641	7	1,1·10 ⁻⁷	0,1	1,4	6,1·10 ⁻¹²
4	9224	16	2,6·10 ⁻⁷	0,2	1,0	9,1·10 ⁻¹²
5	9101	85	1,4·10 ⁻⁶	3,0	3,4	1,7·10 ⁻¹⁰
6	8269	506	8,1·10 ⁻⁶	5,1	1,0	2,9·10 ⁻¹⁰
7	7939	175	2,8·10 ⁻⁶	0,7	0,0	3,8·10 ⁻¹¹
8	8302	181	2,9·10 ⁻⁶	1,0	0,6	6,0·10 ⁻¹¹
9	9294	14	2,2·10 ⁻⁷	0,2	1,6	1,3·10 ⁻¹¹
10	8031	361	5,8·10 ⁻⁶	3,0	0,1	1,7·10 ⁻¹⁰
11	8961	168	2,7·10 ⁻⁶	1,3	0,1	7,4·10 ⁻¹¹
12	8237	61	9,7·10 ⁻⁷	1,2	2,0	7,1·10 ⁻¹¹

Таблица 4

Результаты определения ²⁴¹Pu и изотопного состава в образцах скелета к моменту первого измерения

№ п/п	ID_L3	²⁴¹ Pu		% от суммарной массы			
		Удельная активность, пКи/г	Масса ²⁴¹ Pu в 1 г образца, мг/г	²⁴¹ Am	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	²⁴¹ Pu
1	7929	11	1,1·10 ⁻¹⁰	0,02	99,97	0,003	0,002
2	9423	3,2	3,1·10 ⁻¹¹	0,04	99,95	0,005	0,003
3*	8641	0,8	7,7·10 ⁻¹²	0,17	99,82	0,006	0,007
4	9224	1,1	1,1·10 ⁻¹¹	0,06	99,93	0,004	0,004
5	9101	3,6	3,5·10 ⁻¹¹	0,11	99,88	0,013	0,003
6	8269	10	1,0·10 ⁻¹⁰	0,03	99,97	0,004	0,001
7	7939	3,7	3,6·10 ⁻¹¹	0,02	99,98	0,001	0,001
8	8302	5,5	5,3·10 ⁻¹¹	0,01	99,98	0,002	0,002
9	9294	1,8	1,7·10 ⁻¹¹	0,10	99,89	0,006	0,008
10	8031	17	1,6·10 ⁻¹⁰	0,01	99,98	0,003	0,003
11	8961	6,4	6,2·10 ⁻¹¹	0,01	99,98	0,003	0,002
12	8237	4,6	4,4·10 ⁻¹¹	0,11	99,88	0,007	0,005

Примечание. * – при построении графиков 1–3 значение исключено.

активность исследуемых образцов в основном определяется ²³⁹Pu. Расчет, проведенный с учетом разницы периодов полураспада ²³⁹Pu и

²⁴¹Am, показал, что вклад ²⁴¹Am в суммарную активность образца достигает приблизительно 0,15·(24400/243) ≈ 15 %. Таким образом, пов-

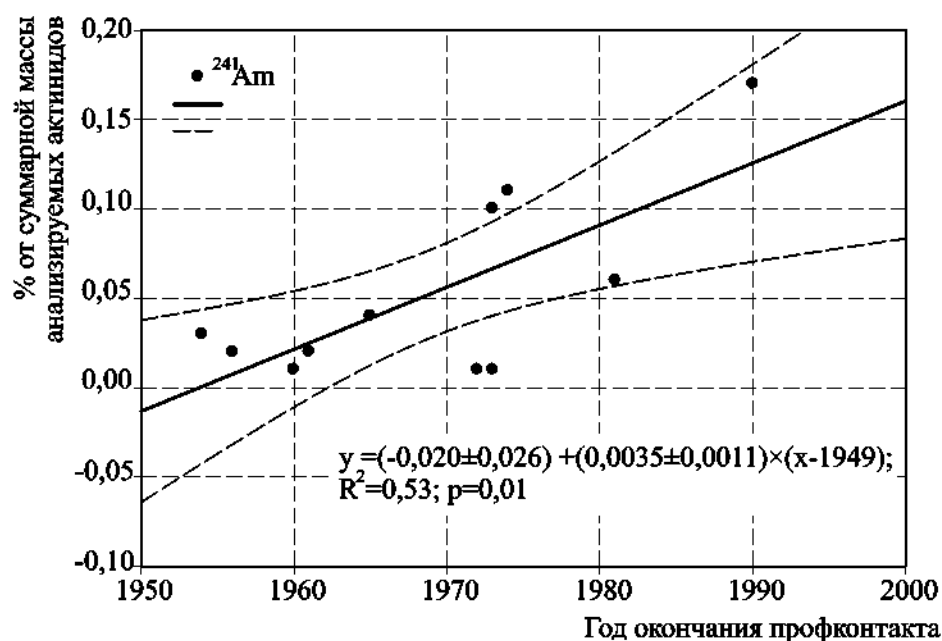


Рис. 1. Массовая концентрация ^{241}Am в % от общей массы актинидов в образце кости у работников ПО "Маяк" в зависимости от года окончания профессионального контакта с промышленными альфа-излучающими аэрозолями

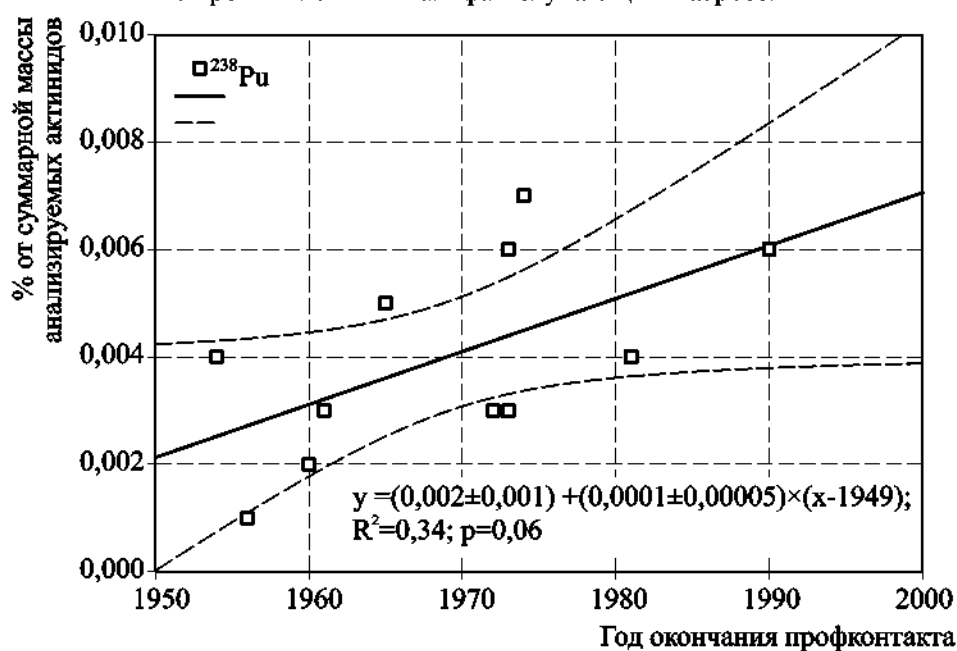


Рис. 2. Массовая концентрация ^{238}Pu в % от общей массы актинидов в образце кости у работников ПО "Маяк" в зависимости от года окончания профессионального контакта с промышленными альфа-излучающими аэрозолями

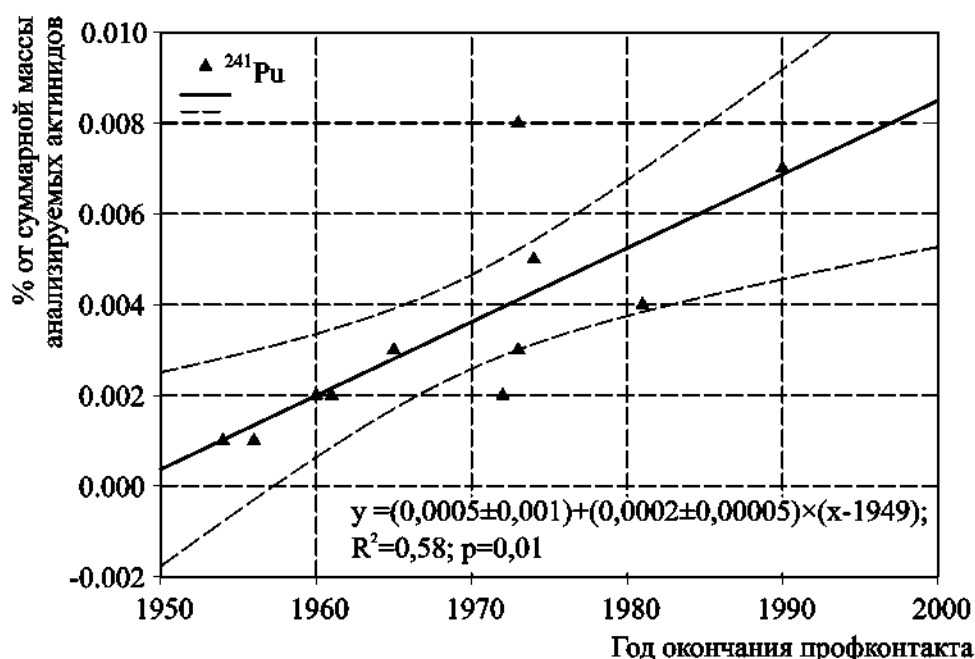


Рис. 3. Массовая концентрация ^{241}Pu в % от общей массы актинидов в образце кости у работников ПО «Маяк» в зависимости от года окончания профессионального контакта с промышленными альфа-излучающими аэрозолями

торный отсроченный радиохимический анализ образцов костной ткани показал заметно растущую роль америция среди актинидов, поступающих в организм работников в рассматриваемый период деятельности предприятия.

Подобно америцию, в том же промежутке времени выявлен тренд возрастания со временем относительного вклада ^{238}Pu в альфа-активность актинидов при уровне значимости, близком к достоверному ($p=0,06$), что коррелирует с данными другого исследования [4], которое указывает на возможность роста вклада ^{238}Pu в суммарную альфа-активность промышленных аэрозолей воздуха рабочих помещений. Однако, коэффициент ежегодного прироста в уравнении регрессии, приведенном на рис. 2, ниже, чем для америция, и составляет $0,0001\% \text{ год}^{-1}$. В 2000 г. массовая концентрация ^{238}Pu достигла $0,007\%$. Относительный вклад в активность с учетом разницы периодов полураспада составил $0,007 \cdot (24400/88) = 1,9\%$. Этот показатель, по-видимому, продолжал расти и после 2000 г.

Результаты предварительных измерений, проведенных в 2005–2007 гг., показали, что вклад ^{238}Pu в суммарную альфа-активность аэрозолей колебался для разных рабочих мест в пределах нескольких десятков процентов.

График рис. 3 показывает, что расчетное значение массовой концентрации ^{241}Pu в общей сумме актинидов также достоверно ($p=0,05$) возрастало, достигнув в 2000 г. значения $0,0085\%$. Возможно, этот тренд продолжался и в последующие годы, однако из-за отсутствия метода измерения бета-излучения низкой энергии, сопровождающего распад этого изотопа, в настоящее время в условиях лаборатории это предположение невозможно проверить.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Повторные измерения в разные сроки одних и тех же образцов костной ткани умерших работников ПО «Маяк», позволили выявить временной тренд в сторону увеличения относи-

тельного вклада ^{241}Am , ^{238}Pu , ^{241}Pu в массу альфа- и бета-излучающих актинидов, поступавших в организм персонала в период 1949–2000 гг.

Предложена методика восстановления бета-активности и определения относительно содержания массы изотопа ^{241}Pu по данным повторных измерений ^{241}Am в образцах костной ткани.

Установленный тренд в сторону роста вклада ^{238}Pu , ^{241}Pu и ^{241}Am в суммарную массу актинидов, поступивших в организм персонала, указывает на необходимость внесения уточнений в применяемый в настоящее время метод косвенной дозиметрии инкорпорированных актинидов. Пересмотр должен касаться не только динамики нуклидного состава рассмотренных радиоактивных веществ, но и учитывать различие их радиобиологических свойств.

Ближайшей задачей в этом направлении является биокинетический анализ сравнительного обмена америция и плутония по данным посмертного радиохимического исследования распределения этих нуклидов в организме, полученных при разовых измерениях радиоактивности образцов органов и тканей.

Результаты, приведенные в предлагаемой статье, дают предварительное представление о количественных характеристиках обменных процессов с учетом изотопного состава нуклидов, поступающих в организм.

ЛИТЕРАТУРА

1. Khokhryakov V.V., Yefimov A.V. Discussion of ^{241}Am role as the factor of internal radiation exposure in Mayak PA workers // *Radiation Protection Dosimetry* (in press).
2. Методика выполнения измерений изотопов плутония, америция, урана и тория в биосубстратах на спектрометре альфа-излучения системы EG&G ORTEC OСТЕТЕ РС. Утв. ФГУП "ВНИИФТРИ", 2005. – 24 с.
3. Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения: Публикация 38 МКРЗ. В 2 ч. – Пер. с англ. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 480 с.
4. Хохряков В.В., Хохряков В.Ф., Сулова К.Г., Соколова А.Б. О растущем вкладе изотопа ^{238}Pu в суммарную альфа-активность экскретов персонала ПО "Маяк" (в печати).