

Динамика выведения плутония с мочой и калом на примере случаев острого ингаляционного поступления промышленных соединений плутония

Соколова А.Б., Ефимов А.В., Ишунина М.В., Сыпко С.А.

Южно-Уральский федеральный научно-клинический центр медицинской биофизики
Федерального медико-биологического агентства, Озерск, Россия

Контроль доз внутреннего облучения от плутония наиболее эффективно осуществляется косвенным методом, основанным на интерпретации результатов измерений активности нуклида в экскретах с использованием биокинетических и дозиметрических моделей. В настоящее время нормирующие документы Российской Федерации используют модели, представленные Международной комиссией по радиологической защите в Публикациях 30, 66, 67, в то время как Международной комиссией по радиологической защите разработаны новые модели и подходы, представленные в Публикациях 130, 134, 137, 141. Целью данного исследования было показать фактическую динамику выведения плутония с мочой и калом при его поступлении в составе промышленного соединения сложного изотопного состава в сравнении с расчетными данными. Материалы и методы: Для выполнения исследования в качестве исходных данных использовались результаты определения активности плутония в суточных количествах мочи и кала у трех работников с острым ингаляционным поступлением промышленных соединений плутония в результате возникновения аварийной ситуации. Результаты исследования и обсуждение: Для каждого случая с помощью критерия Акаике был выбран наиболее пригодный сценарий (модель и набор физико-химических свойств соединения). Расчеты выполнялись на основании результатов измерений активности плутония в моче, результатов измерения активности плутония в кале и результатов измерения активности плутония в моче и кале одновременно. Выполненный статистический анализ показал, что выбор наиболее пригодной модели и набора физико-химических свойств соединения обусловлен выбором исходных данных. В одном из случаев ни одна из рассмотренных моделей не позволила адекватно объяснить наблюдаемые уровни плутония в моче и кале. Заключение: Очевидно, что в настоящее время существуют пробелы в знаниях о поведении промышленных соединений плутония в организме, в том числе присутствующих на участках по производству новых видов топлива, что требует серьезных исследований как биокинетики, так и физико-химических свойств промышленных соединений плутония.

Ключевые слова: плутоний, биокинетическая модель, ингаляционное поступление.

Введение

Наиболее эффективным методом контроля доз внутреннего облучения, обусловленного поступлением плутония, является метод косвенной дозиметрии, основанный на интерпретации результатов измерений активности нуклида в экскретах [1]. Для оценки поступления и дозы внутреннего облучения от плутония для персонала используются биокинетические и дозиметрические модели, рекомендуемые Международной комиссией по ра-

диологической защите (МКРЗ). В настоящее время основные нормирующие документы НРБ-99/2009¹ и ОСПОРБ-99/2010² в области обеспечения радиационной безопасности, применяемые в Российской Федерации, опираются на требования и подходы, изложенные Международной комиссией по радиологической защите в Публикациях 68, 78, в которых для оценки основных нормирующих величин использованы биокинетические модели (далее стандартные модели МКРЗ), представленные в Публикациях 30, 66, 67 [2–7].

¹ Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009): Санитарные правила и нормативы СанПиН 2.6.1.2523-09. Утверждены постановлением Главного государственного санитарного врача Российской Федерации от 07.07.2009 г. № 47. Зарегистрированы в Министерстве юстиции Российской Федерации 14.08.2009, регистрационный № 14534. [Radiation Safety Standards (RSS-99/2009): Sanitary Regulations and Standards SanPiN 2.6.1.2523-09. Approved by Decision No.47 of 07.07.2009 by Chief of Public Health of the Russian Federation). Registered in Ministry of Justice of the Russian Federation on 14.09.2009, registration No.14534. (In Russ.)]

² СП 2.6.1.2612-10. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010): Санитарные правила и нормативы (в редакции изменения № 1, утвержденного Постановлением Главного государственного врача Российской Федерации от 16.09.2013 № 43). Зарегистрировано Минюстом России 05.11.2013, регистрационный № 30309. [Sanitary Regulations 2.6.1.2612-10. Basic sanitary rules for radiation safety (BSRRS-99/2010): Sanitary regulations and standards (as amended to Change No.1 approved by Decision No.43 of 16 September 2013 by Chief of Public Health of the Russian Federation). Registered in Ministry of Justice of the Russian Federation on 05.11.2013, registration No.30309. (In Russ.)]

Соколова Александра Борисовна

Южно-Уральский федеральный научно-клинический центр медицинской биофизики

Адрес для переписки: 456783, Россия, Челябинская область, Озерск, Озерское шоссе, д. 19; E-mail: sokolova@subi.su

В результате процесса высокотемпературной обработки соединений, входящих в состав нового вида топлива, физико-химические характеристики аэрозолей, генерируемых на участках по его производству, а также особенности их метаболизма в организме человека, отличаются от таковых при стандартных условиях облучения. В настоящее время МКРЗ рекомендованы новые подходы и новые биокинетические и дозиметрические модели (the Occupational Intakes of Radionuclides, далее – OIR-модели), представленные в Публикациях 130, 134, 137, 141 [8–11], в Публикации 141 приведены значения параметров для расширенного набора соединений плутония, в их числе – наночастицы и смесь оксидов плутония и урана (МОКС-соединения).

Цель исследования – показать фактическую динамику выведения плутония с мочой и калом при его поступлении в составе промышленного соединения сложного изотопного состава в сравнении с расчетными данными, полученными при помощи стандартных биокинетических моделей и OIR-моделей, на примере трех случаев с острым ингаляционным поступлением в условиях действующего производства.

Материалы и методы

Описание случаев

02.07.2019 при выполнении технологической операции в результате разгерметизации контейнера произошло ингаляционное поступление актинидов у трех работников Федерального Государственного Унитарного Предприятия «Производственное Объединение «Маяк» (ФГУП «ПО «Маяк»).

02.07.2019 около 9.30 работники приступили к выполнению технологической операции, около 11.30 при проведении радиационного контроля было обнаружено загрязнение поверхностей в зоне выполнения операции, в 11.30

был проведен радиационный контроль работников, выполнявших операцию. Около 12.00 работники произвели отмыв в санпропускнике с промежуточными замерами, после дезактивации были вновь зафиксированы повышенные уровни поверхностного загрязнения. В 13.00 работники были направлены на здравпункт для введения пентацина. Около 16.00 часов работники были направлены на внеплановое обследование в Южно-Уральский институт биофизики (в настоящее время Федеральное государственное бюджетное учреждение науки «Южно-Уральский федеральный научно-клинический центр медицинской биофизики» Федерального медико-биологического агентства). Комплексное дозиметрическое обследование работников – аппаратчика (случай А), инженера-технолога (случай В), инженера по спецучету (случай С) – было выполнено в лаборатории дозиметрии внутреннего облучения в рамках специального дозиметрического контроля. Обследование выполнялось в соответствии с требованиями методических указаний³.

Исходными данными для настоящего исследования являются результаты определения содержания ²³⁸Pu, ²³⁹Pu и ²⁴¹Am в суточных количествах мочи (СКМ) и суточных количествах кала (СКК), собранных в период стимулированной пентацином экскреции с 02.07.2019 по 28.01.2020, а также в период последствия пентацина и естественной экскреции с 25.02.2020 по 21.03.2022. С целью получения поддерживающей информации для каждого обследуемого были выполнены прямые измерения содержания ²⁴¹Am в легких с использованием спектрометра излучения человека (СИЧ).

Сведения о количестве собранных и проанализированных биопроб и количестве измерений содержания ²⁴¹Am в легких для каждого обследуемого за период с 02.07.2019 по 21.03.2022 представлено в таблице 1.

Таблица 1. Количество проб экскретов и измерений содержания ²⁴¹Am в легких
[Table 1. Number of excreta samples and measurements of ²⁴¹Am content in lung]

Случай [Case]	Количество проб (измерений) [Number of samples (measurements)]				Измерения содержания ²⁴¹ Am в легких [Measurements of ²⁴¹ Am content in the lungs]
	В период действия и последствия ДТПА [During the period of action and after-effect of ДТПА]		В период естественной экскреции [During the period of natural excretion]		
	Моча [Urine]	Кал [Feces]	Моча [Urine]	Кал [Feces]	
Случай А [Case A]	20	17	36	28	43
Случай В [Case B]	19	17	37	31	42
Случай С [Case C]	18	14	39	31	22

Для работников проводилось длительное лечение препаратом пентацин, включающее:

- ежедневное внутривенное введение пентацина с первых суток по 14-е сутки;
- затем на 16-е, 18-е, 21-е, 23-е, 25-е, 28-е, 30-е, 32-е, 35-е, 37-е, 39-е, 42-е, 58-е, 59-е, 60-е, 65-е, 66-е, 67-е, 72-е,

73-е, 74-е, 80-е, 84-е, 88-е, 94-е, 98-е, 102-е, 108-е, 112-е, 116-е, 122-е, 127-е, 130-е, 136-е, 140-е, 144-е, 150-е сутки.

Для случая С с 25-х по 50-е сутки лечение не проводилось, затем было продолжено с 50-х по 53-е сутки ежедневно и, начиная с 58-х суток, – по графику случаев А и В. Дозировка пентацина в течение всего курса была 0,5 г.

³ МУ 2.6.1.034-2014. Порядок взаимодействия предприятий Госкорпорации «Росатом» и органов и организаций ФМБА России при нестандартном (раневом) и аварийном ингаляционном поступлении изотопов плутония и америция-241. [Methodological Guidelines 2.6.1.034-2014. Order of Interaction between enterprises of State Atomic Energy Corporation “Rosatom” and organs and organizations of FMBA of Russia in case of non-standard (wound) and accidental inhalation intake of plutonium and americium-241 isotopes. (In Russ.)]

Метод измерения на установках СИЧ

Для измерения содержания америция в легких использовался стационарный СИЧ 7.5. Детекторы установки СИЧ (фирмы «Canberra» из высокочистого германия) располагаются в защитной камере для снижения воздействия внешнего излучения. Электронное оборудование расположено вне защитной камеры и соединяется посредством кабелей с детекторами. Управление электронным оборудованием, а также анализ спектрометрических данных осуществляется с помощью персонального компьютера и специального программного обеспечения – программ Genie-2000 и Abacos-2000. Для измерения активности в легких используются два детектора, детекторы устанавливаются симметрично в точках, расположенных на 20 см ниже плеча и в 10 см от центра грудины, соблюдается расположение детекторов по нормали к поверхности на расстоянии 1 см от пациента. Время измерения составляет 30 минут. Минимальная детектируемая активность в легких при стандартном времени измерения 30 минут в среднем составляет $12,5 \pm 3,8$ Бк, но является индивидуальной для каждого измеряемого индивидуума и зависит как от антропометрических параметров измеряемого человека, так и от присутствия других радионуклидов в измеряемом органе.

Метод биофизического обследования

Для измерения активности изотопов плутония и ^{241}Am в экскретах применялся альфа-спектрометрический метод с радиохимической подготовкой^{4,5}. Для контроля химического выхода радионуклидов перед началом анализа в пробы вводилось известное количество меток – ^{242}Pu , ^{243}Am . Разделение плутония и америция проводилось ионообменным методом на сильноосновном анионите AG1-X4. Отделение ^{241}Am от примесей – Th и элементов первой и второй групп таблицы Менделеева – выполнялось методом вакуумной экстракционной хроматографии на смоле DGA-normal. Счетные образцы для альфа-спектрометра готовились методом электролитического осаждения на стальные диски диаметром 17,5 мм. Для проведения измерений использовался альфа-спектрометр ORTEC, с помощью которого проводилась регистрация энергетических спектров альфа-излучения, испускаемого исследуемыми радионуклидами в счетных образцах.

Статистические методы сравнения моделей

С целью сравнения качества подгонки данных моделями использовался информационный критерий Акаике (AIC) [12]. Он позволяет сравнивать и выбирать наиболее пригодные модели через функцию правдоподобия на одном наборе данных с одинаковыми весами. Наилучшая модель имеет наименьшее AIC значение среди всех. Критерий не позво-

ляет делать сравнение для разных наборов исходных данных. При вычислении предполагалось, что вариабельность ведет себя по следующей формуле:

$$A_{meas} = A_{calc} \cdot \exp(\varepsilon),$$

где A_{meas} – измеренное значение активности, A_{calc} – значение активности, вычисленное по модели, ε – вариабельность (случайная величина) с нормальным распределением. Для продолжения исследования был сделан переход к логарифмам от A_{meas} , A_{calc} и $\exp(\varepsilon)$.

Предварительно производилась проверка остатков на нормальность по критерию Колмогорова [13]. Это необходимо для проверки адекватности модели и для корректного использования формул вычисления AIC значений. В данной работе был выбран 3% уровень значимости для отвержения гипотезы нормальности распределения. По таблице для распределения статистики Колмогорова и для выбранного уровня значимости находилось критическое значение для $K(t) = 100\% - 3\%$, т.е. $K^{-1}(97\%) = 1,44909$. Если статистика $\sqrt{n}D_n$, вычисленная по остаткам и их предположительному распределению, была больше $K^{-1}(97\%)$, то предположение о нормальности распределения остатков на уровне значимости 3% отвергалось; в противном случае данное предположение не отвергалось.

Результаты и обсуждение

К исследованию привлечены случаи с длительным периодом наблюдения, обеспеченные большим количеством исходных данных. Исходя из сведений о производственном участке, на котором произошла аварийная ситуация, и выполняемой работниками технологической операции, существует вероятность, что обращение происходило с источником, содержащим несколько видов оксидов делящихся материалов.

Для описания динамики выведения плутония с экскретами для выбранных случаев острого ингаляционного поступления использовались стандартные биокинетические модели МКРЗ (модель дыхательного тракта, представленная в 66 Публикации МКРЗ, модель желудочно-кишечного тракта 30 Публикации МКРЗ, и модель, описывающая поведение радионуклидов, попавших в кровь 67 Публикации МКРЗ) [3–5] и модели OIR. В модели OIR используется модифицированная модель дыхательного тракта 130 Публикации МКРЗ [9], предложенная вместо модели Публикации 66 МКРЗ. Пересмотренные данные по ингаляции, заглатыванию, системной биокинетике для плутония и америция представлены в 141 Публикации МКРЗ [11]. Модель желудочно-кишечного тракта Публикации 30 МКРЗ [8] заменена на модель, представленную в Публикации 100 МКРЗ [14].

⁴ МВИ. Методика выполнения измерений изотопов плутония, америция, урана и тория в биосубстратах на спектрометре альфа-излучения системы EG&G ORTEC OCTETE PC. Свидетельство №40090.5H304 от 18.05.2005, выдано ФГУП ВНИИФТРИ. Озерск, 2006. 24 с. [Methodology for measurement of plutonium, americium, uranium and thorium isotopes in biosubstrates using EG&G ORTEC OCTETE PC alpha-radiation spectrometer. Certificate No.40090.5H304 of 18 May 2005, issued by FSUE VNIIFTRI (The Federal State Unitary Enterprise «Russian metrological institute of technical physics and radio engineering»). Ozersk; 2006. 24 p. (In Russ.)]

⁵ МВИ. Методика выполнения измерений изотопов плутония и америция в образцах мочи и кала в условиях повышенной экскреции, стимулированной введением пентамина, у работников радиохимических производств Свидетельство №41090.2П002, выдано 26.11.2012 г. ЦММИ ФГУП ВНИИФТРИ. Озерск, 2012. [Methodology for measuring plutonium and americium isotopes in urine and feces samples under conditions of increased excretion stimulated by the administration of pentamin in workers of radiochemical production facilities. Certificate No. 41090.2П002 of 26.11.2012 issued by FSUE VNIIFTRI. Ozersk; 2012. (In Russ.)]

Для исследования были сформированы следующие наборы моделей и физико-химических свойств соединений:

- стандартная модель МКРЗ, тип соединения «медленно растворимые» (S), медианный по активности аэродинамический диаметр (АМАД) 1 мкм;
- стандартная модель МКРЗ, тип соединения S, АМАД 5 мкм;
- модель OIR, тип соединения S, АМАД 1 мкм;
- модель OIR, тип соединения S, АМАД 5 мкм;
- модель OIR, тип соединения МОКС, АМАД 1 мкм;
- модель OIR, тип соединения МОКС, АМАД 5 мкм;
- модель OIR, тип соединения наночастицы, АМАД 1 мкм;
- модель OIR, тип соединения наночастицы, АМАД 5 мкм.

В настоящем исследовании использовались все результаты измерений активности плутония в экскретах, полученные в период с 02.07.2019 по 21.03.2022. Расчеты выполнялись по результатам измерений активности плутония в моче, по результатам измерения активности плутония в кале и по результатам измерения активности плутония в моче и кале одновременно. Вследствие того, что с целью декорпорации нуклидов для работников применялся препарат пентацин

(CaNa₂-ДТПА), полученные в период применения ДТПА результаты измерения содержания плутония в моче приводились к естественным уровням. Приведение результатов экскреции плутония с мочой, полученной в период применения пентацина и в период последствия, к естественным уровням возможно с помощью коэффициентов ускорения⁶ [15] или с помощью специальных моделей поведения плутония в присутствии ДТПА [16–23]. Для целей исследования был использован единый способ приведения данных с помощью коэффициентов ускорения. Большинство исследователей сходятся во мнении, что влияние пентацина на ускорение выведения плутония с калом незначительно, поэтому при оценке поступления по результатам измерения содержания в суточном количестве кала влияние ДТПА не учитывалось.

Для каждого из наборов моделей и типов соединений был рассчитан критерий Акаике (AIC). В таблице 2 приведены сведения о наиболее пригодной модели и типе поступившего соединения для каждого набора исходных данных. Наиболее пригодная модель выбиралась на основании значения критерия Акаике: чем меньше значение критерия, тем точнее модель. При этом абсолютное значение AIC не имеет значения и только указывает на относительный порядок сравниваемых моделей.

Таблица 2. Информация о наиболее пригодной модели и типе поступившего соединения для каждого работника
[Table 2. Information on the most suitable model and type of compounds for each employee]

Случай [Case]	Набор данных (сценарий) [Dataset (scenario)]		
	Сценарий 1 (по результатам измерения активности плутония в моче) [Scenario 1, used the results of measuring the plutonium activity in urine]	Сценарий 2 (по результатам измерения активности плутония в кале) [Scenario 2, used the results of measuring the plutonium activity in feces]	Сценарий 3 (по результатам измерения активности плутония в моче и кале) [Scenario 3, used the results of measuring the plutonium activity in urine and feces]
Случай А [Case A]	Модель: Стандартная [Model: Standard]	Модель: OIR [Model: OIR]	Модель: OIR [Model: OIR]
	АМАД: 5 мкм [AMAD: 5 μm]	АМАД: 1 мкм [AMAD: 1 μm]	АМАД: 1 мкм [AMAD: 1 μm]
	Тип соединения: S [Type: S]	Тип соединения: МОКС [Type: MOX]	Тип соединения: S [Type: S]
Случай В [Case B]	Модель: Стандартная [Model: Standard]	Модель: Стандартная [Model: Standard]	Модель: Стандартная [Model: Standard]
	АМАД: 5 мкм [AMAD: 5 μm]	АМАД: 1 мкм [AMAD: 1 μm]	АМАД: 1 мкм [AMAD: 1 μm]
	Тип соединения: S [Type: S]	Тип соединения: S [Type: S]	Тип соединения: S [Type: S]
Случай С [Case C]	Модель: OIR [Model: OIR]	Модель: OIR [Model: OIR]	Модель: OIR [Model: OIR]
	АМАД: 5 мкм [AMAD: 5 μm]	АМАД: 1 мкм [AMAD: 1 μm]	АМАД: 1 мкм [AMAD: 1 μm]
	Тип соединения: МОКС [Type: MOX]	Тип соединения: МОКС [Type: MOX]	Тип соединения: МОКС [Type: MOX]

Выполненный статистический анализ показал, что при использовании для описания биокинетики нуклида для случая С более пригодной оказалась OIR-модель, тип соединения МОКС, значение АМАД 1 мкм и 5 мкм. Для случая В более пригодной является стандартная модель МКРЗ, тип

соединения S, АМАД 1 и 5 мкм. Для случая А прослеживается наибольшее влияние исходных данных на выбор модели и типа соединения.

Для каждого анализируемого случая, для каждого сценария (таблица 2) были выполнены оценки поступления, и на их

⁶МУ 2.6.1.026-09. Методика расчета доз облучения персонала, обусловленных поступлением изотопов плутония и америция-241 через поврежденные кожные покровы. М.: Федеральное медико-биологическое агентство, 2009. 38 с. [Methodological Guidelines 2.6.1.026-09. Methodology for calculating personnel doses resulting from the intake of plutonium and americium-241 isotopes through damaged skin. Moscow: Federal Medical-Biological Agency; 2009. 38 p. (In Russ.)]

основе получена расчетная динамика выведения плутония с мочой и калом для каждого сценария. На рисунках 1–3 графически представлено сравнение фактических результатов измерений активности плутония в суточном количестве мочи

(а) и в суточном количестве кала (б) с расчетными оценками, полученными по сценариям, приведенным в таблице 2 для случая А (рис. 1), случая В (рис. 2) и случая С (рис. 3).

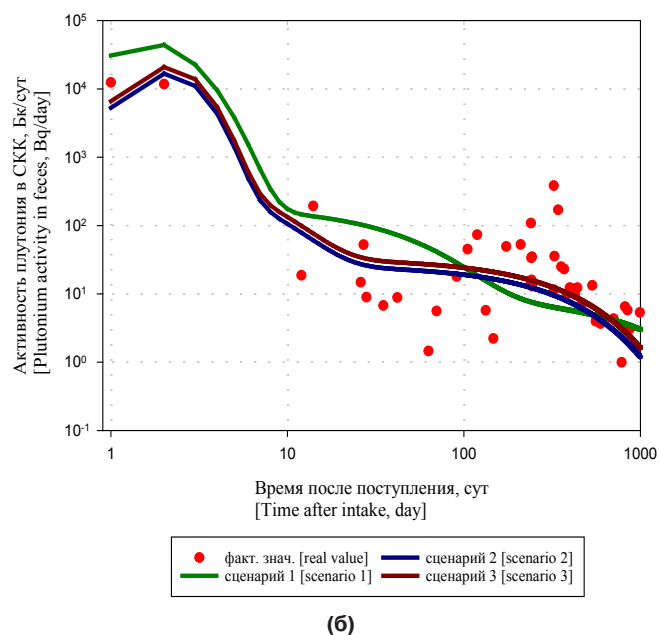
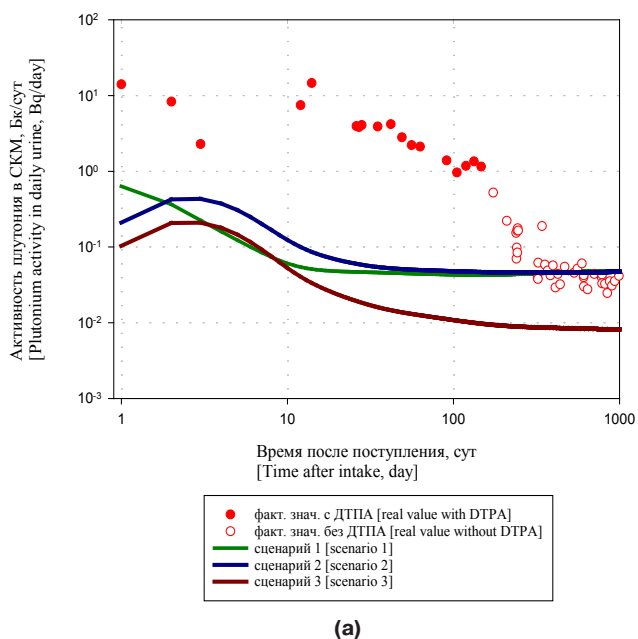


Рис. 1. Сравнение фактических результатов измерений содержания плутония в моче (а) и кале (б) с расчетными значениями для случая А

[Fig. 1. Comparison of actual results of measurements of plutonium content in urine (a) and feces (б) with calculated values for case A]

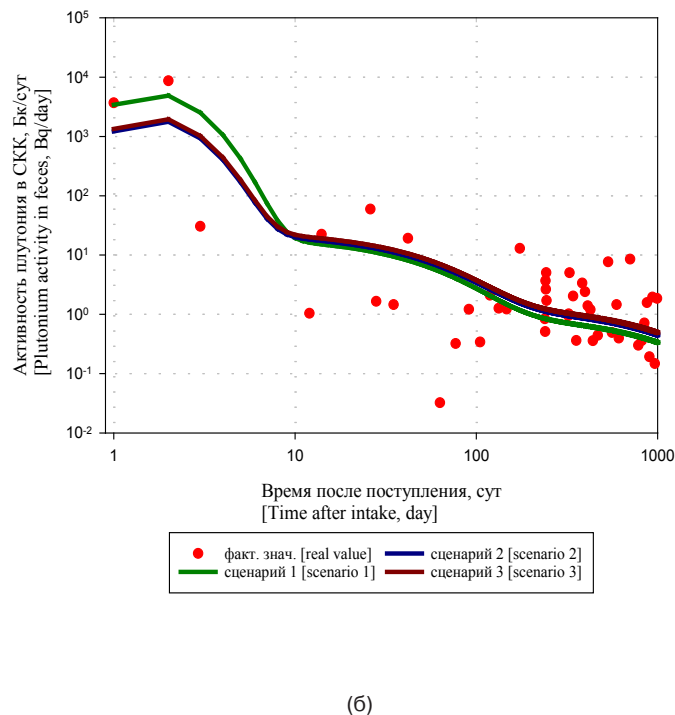
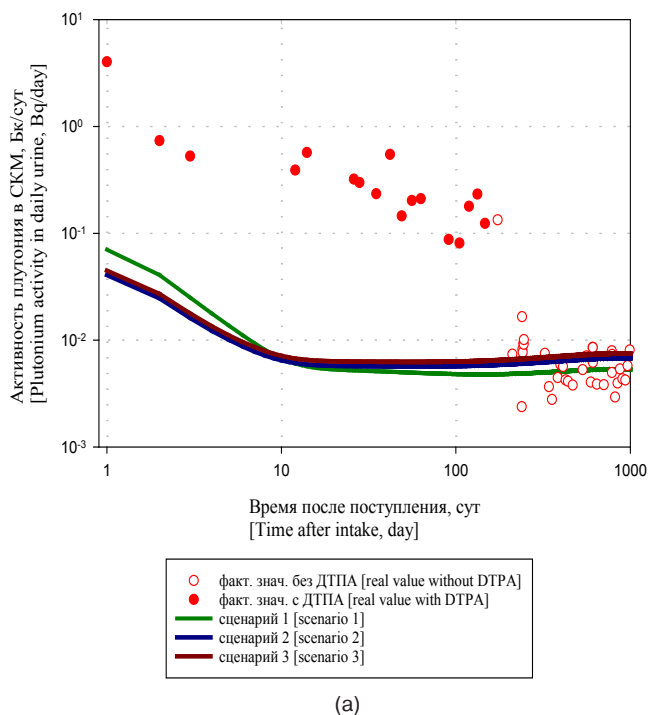


Рис. 2. Сравнение фактических результатов измерений содержания плутония в моче (а) и кале (б) с расчетными значениями для случая В

[Fig. 2. Comparison of actual results of measurements of plutonium content in urine (a) and feces (б) with calculated values for case B]

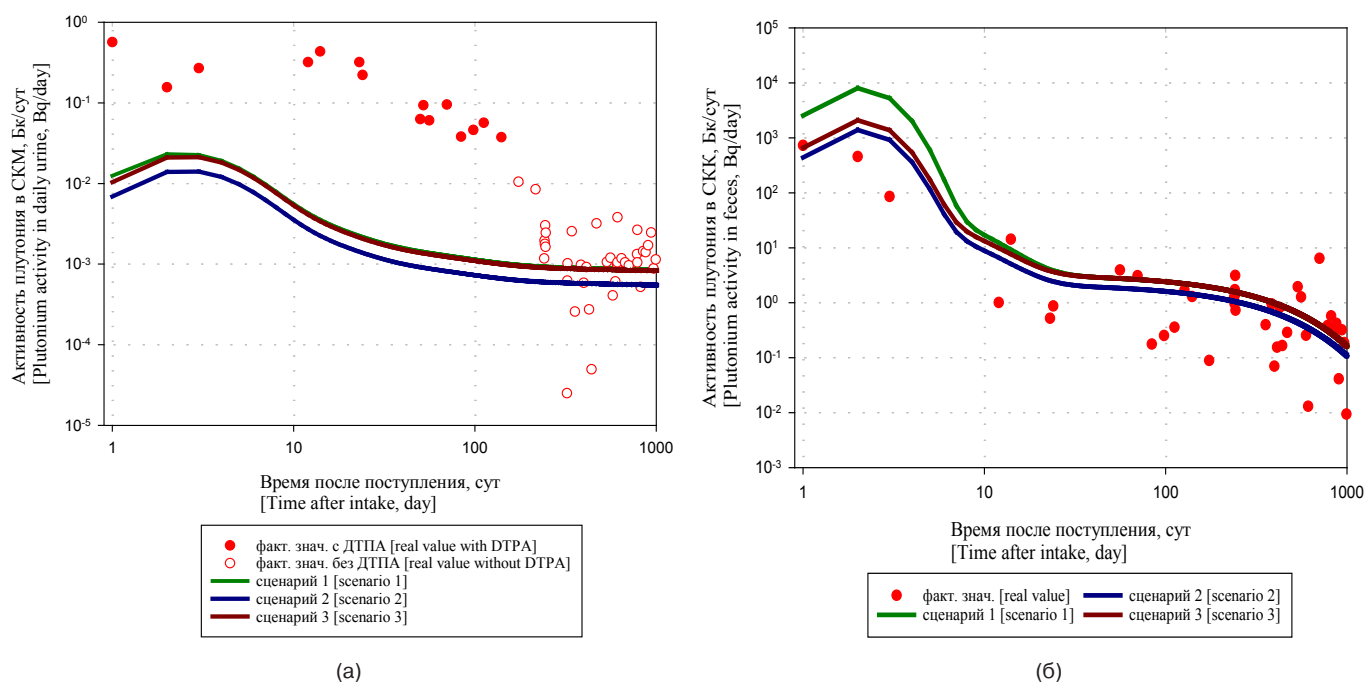


Рис. 3. Сравнение фактических результатов измерений содержания плутония в моче (а) и кале (б) с расчетными значениями для случая С

[Fig.3. Comparison of actual results of measurements of plutonium content in urine (a) and feces (б) with calculated values for case C]

Очевидно, что для случая А наблюдаемая динамика выведения нуклидов с экскретами не соответствует динамике выведения, полученной в соответствии с моделями МКРЗ, несмотря на то, что рассмотрены наиболее вероятные типы соединений, поступление которых возможно на производственном участке. При любых рассмотренных сценариях результаты измерения активности плутония в моче и кале одновременно не могут быть описаны с использованием стандартной модели МКРЗ и OIR-модели.

Возможным объяснением полученных расхождений может служить:

- большая вариабельность результатов измерений в кале. К примеру, в работе Juliao et al. показано, что масса СКК может различаться до 5,7 раз в разные дни сбора у одного и того же человека, так же как концентрация ²³⁴U, которая может различаться от 1 до 30 раз [24];

- недостаточно изученное выведение нуклидов с калом в период применения ДТПА. В данном исследовании были использованы результаты измерений активности плутония в СКК, полученные в период применения ДТПА. В настоящее время считается, что влияние пентацина на ускорение выведения плутония с калом незначительно, что может не соответствовать реальности. Согласно модели поведения плутония в присутствии ДТПА Konzen et. al., при введении ДТПА в отдаленные сроки после ингаляционного поступления, выведение плутония с калом увеличивается в 3 и в 250 раз для типов S и F соответственно [20, 21]. В работе Плотниковой с соавт. при проведении клинических исследований для работников ПО «Маяк» получено ускорение выведения плутония с калом в 2-60 раз [25], ускорение выведения плутония с калом показано также в работе James et al. [26]. В настоя-

щем исследовании при использовании результатов измерений СКК в период действия ДТПА ускорение выведения плутония с калом не учитывалось;

- несоответствие значений параметров выведения плутония с калом фактическим данным. В работе Konzen et. al. [27] представлена новая модифицированная системная модель, с привлечением данных о выведении плутония с калом, которая предсказывает отличное от модели Leggett et al. [28] выведение плутония с калом в сроки 100-1000 дней после поступления;

- недостаточная изученность поведения аэрозолей плутония, присутствующих на участках по производству МОКС топлива, в организме человека, а также их поведение в присутствии в организме хелатов. В 141 Публикации МКРЗ приводятся данные, использованные для расчета параметров модели для МОКС-соединений. В основном, это экспериментальные данные, полученные на животных [29–31], и единичные исследования поведения в организме человека [32]. На основании единственного исследования поведения МОКС-соединений в организме человека, выполненного Foster et al., определено значение $f_r = 0,05$, $s_s = 2 \times 10^{-5} \text{ сут}^{-1}$ [32]. В 141 Публикации МКРЗ для МОКС-соединений рекомендованы значения $f_r = 0,004$, $s_s = 1 \times 10^{-5} \text{ сут}^{-1}$.

Результаты измерения содержания америция в легких использовались в данном исследовании в качестве подтверждения предположений о физико-химических свойствах поступившего соединения. Как оказалось, изотопный состав (по активности), установленный на основании данных определения активности изотопов плутония и ²⁴¹Am в собранных за первые после поступления сутки пробах кала, когда экскреция радионуклидов преимущественно определяется механическим клиренсом и может наиболее близко

описывать изотопный состав поступивших соединений, значительно отличался от изотопного состава, определенного в поздние сроки после поступления. Поэтому вклад ^{241}Am в дозовую нагрузку определялся расчетным методом с учетом изотопного состава в период после окончания применения ДТПА и составил около 6 % от суммарной активности америция и изотопов плутония. На рисунке 4 представлено сравнение фактических результатов измерений содержания америция в легких с расчетными оценками по трем сценариям (табл. 2).

Данные, представленные на рисунке 4, не противоречат исходным предположениям о физико-химической форме поступившего соединения для случая А и случая В. Для случая С оценки, полученные по результатам измерения активности плутония в экскрементах, не соответствуют результатам, полученным при прямых измерениях содержания ^{241}Am легких на установке СИЧ. Это может быть связано с тем, что большинство прямых измерений для этого случая находились на уровне НПДИ метода, а часть измерений – ниже НПДИ.

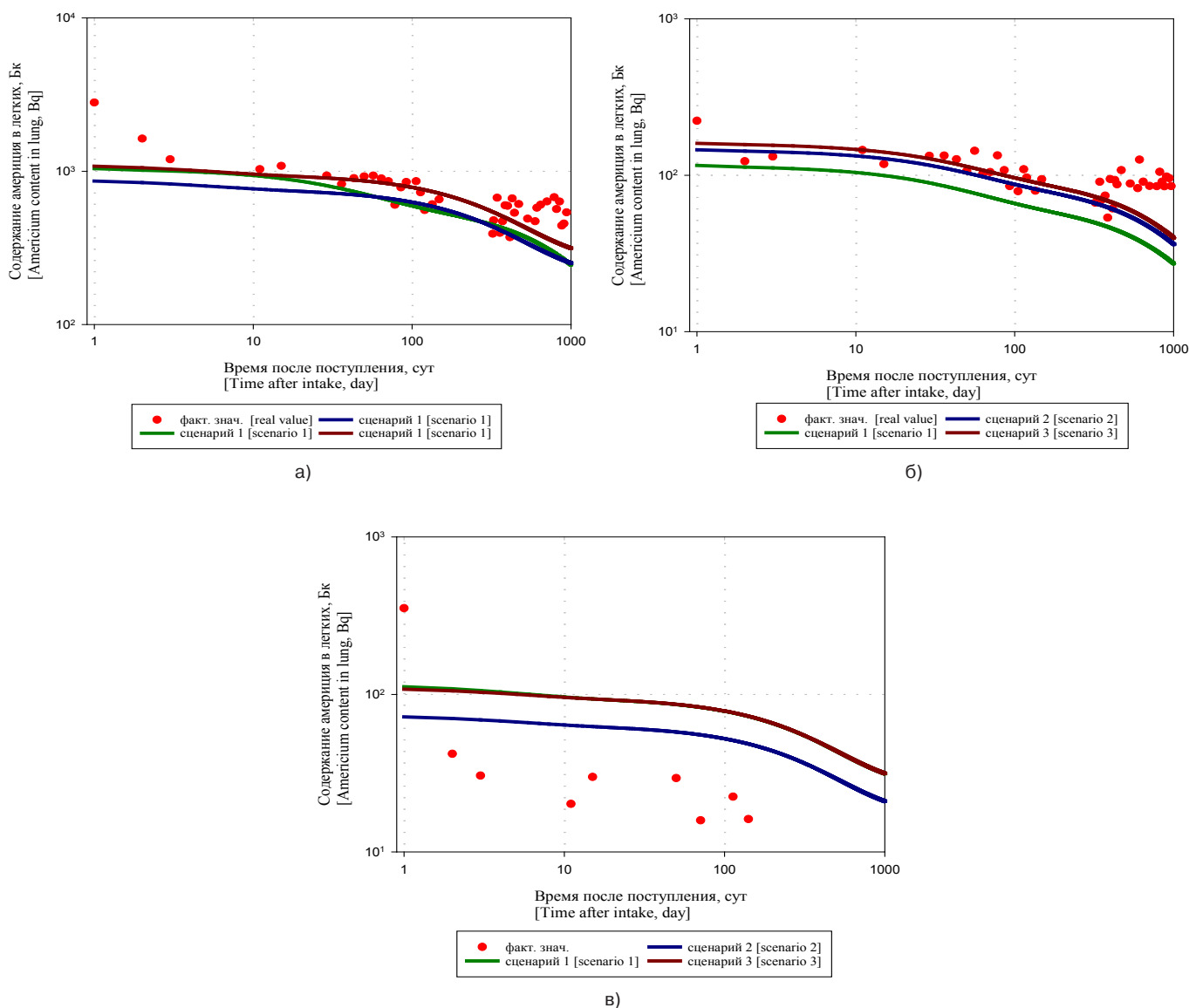


Рис. 4. Сравнение фактических результатов измерений содержания америция в легких с расчетными значениями для случая А (а), случая В (б), случая С (в)

[Fig.4. Comparison of actual results of measurements of americium content in lung with calculated values for case A (a), case B (б), case C (в)]

Заключение

Проведенные исследования показали, что для работников, вовлеченных в одну аварийную ситуацию, не удалось подобрать единую биокинетическую модель и свойства поступившего соединения для описания фактической динамики выведения плутония с мочой и калом. В одном из рассмотренных случаев ни стандартные модели МКРЗ, ни OIR-

модели не позволили адекватно объяснить наблюдаемые уровни плутония в моче и кале. Возможно, это обусловлено пробелами в знаниях о биокинетике промышленных соединений плутония, присутствующих на участках по производству новых видов топлива, а также малой изученностью физико-химических характеристик радиоактивных аэрозолей, генерируемых на участках по производству МОКС топлива.

Изучение биокинетики поступивших соединений плутония, определение динамики формирования доз облучения тканей и органов необходимы для обоснования значений дозовых коэффициентов, связывающих величину поступления и эффективную дозу внутреннего облучения, что, в свою очередь, необходимо для обеспечения выполнения требований по радиационной безопасности при работах с источниками, содержащим несколько видов оксидов делящихся материалов, в том числе с новыми видами ядерного топлива, в части контроля внутреннего облучения.

Сведения о личном вкладе авторов в работу над статьей

Соколова А.Б. – общее руководство выполнением работы, подготовка черновика статьи, подготовка окончательного варианта статьи.

Ефимов А.В. – анализ исходных данных, редакция промежуточного варианта статьи.

Ишунина М.В. – подготовка раздела материалы и методы, анализ исходных данных.

Сыпко С.А. – подготовка средств измерений и выполнение измерений, анализ литературных данных, редакция промежуточного варианта статьи.

Благодарности

Авторы благодарят А.Б. Джунушалиева за помощь при выполнении статистического анализа, а также рецензентов за тщательный анализ статьи.

Информация о конфликте интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов при выполнении работы и подготовки данной статьи.

Сведения об источнике финансирования

Работа выполнена в рамках Государственного контракта от 15.06.2025 № 11.314.25.2 «Техногенное облучение и его отдаленные медицинские последствия» шифр «Последствия 25-27», финансируемого ФМБА России.

Литература

1. ICRP. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103 // Annals of the ICRP. 2007. Vol. 37, No 2-4.
2. ICRP. Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30, Part 1 // Annals of the ICRP. 1979. Vol. 2, No 3/4.
3. ICRP. Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30, Supplement to Part 1. Ann. ICRP 3(1-4).
4. ICRP. Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30, Part 2 // Annals of the ICRP. 1980. Vol. 4, No 3/4.
5. ICRP. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66 // Annals of the ICRP. 1994. Vol. 24, No 1-3.
6. ICRP. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2. Ingestion dose coefficients. ICRP Publication 67 // Annals of the ICRP. 1993. Vol. 23, No 3/4.
7. ICRP. Dose coefficients for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 68 // Annals of the ICRP. 1994. Vol. 24, No 4.
8. ICRP. Individual monitoring for internal exposure of workers – replacement of ICRP Publication 54. ICRP Publication 78 // Annals of the ICRP. 1997. Vol. 27, No 3/4.
9. ICRP. Occupational Intakes of Radionuclides: Part 1. ICRP Publication 130 // Annals of the ICRP. 2015. Vol. 44, No 2.
10. ICRP. Occupational intakes of radionuclides: Part 2. ICRP Publication 134 // Annals of the ICRP. 2016. Vol. 45, No 3/4.
11. ICRP. Occupational intakes of radionuclides: Part 3. ICRP Publication 137 // Annals of the ICRP. 2017. Vol. 46, No 3/4.
12. ICRP. Occupational intakes of radionuclides: Part 4. ICRP Publication 141 // Annals of the ICRP. 2019. Vol. 48, No 2/3.
13. Motulsky H.J., Christopoulos A. Fitting models to biological data using linear and nonlinear regression. A practical guide to curve

fitting. San Diego. CA: GraphPad Software Inc., 2003. 351 p.

13. Айвазян С.А., Енюков И.С., Мешалкин Л.Д. Прикладная статистика: Основы моделирования и первичная обработка данных: Справ. изд. М.: Издательство «Финансы и статистика», 1983. 471 с.
14. ICRP. Human alimentary tract model for radiological protection. ICRP Publication 100 // Annals of the ICRP. 2006. Vol. 36, No 1/2.
15. Халтурин Г.В., Любчанский Э.Р., Плотнокова Л.А., Демина Г.А. Определение скелетного и системного содержания плутония и нептуния в организме человека при аварийном поступлении их растворимых и относительно растворимых соединений // Вопросы радиационной безопасности. 2003. Спец. выпуск. С. 71-77.
16. Hall R.M., Poda G.A., Fleming R.R., Smith J.A. A mathematical model for estimation of plutonium in the human body from urine date influenced by DTPA therapy // Health Physics. 1978. Vol. 34. P. 419-431.
17. Bailey B.R., Eckerman K.F., Townsend L.W. An analysis of a puncture wound case with medical intervention // Radiation Protection Dosimetry. 2003. Vol. 105. P. 509-512.
18. Durbin P.W. and Schmidt C. Predicting the kinetics of chelating agents in man from animal data // Health Physics. 1989. Vol. 57. P. 165-174.
19. Stather J.W., Smith H., Bailey M.R., Birchall A., Bulman A., Crawley F.E.H. The retention of ¹⁴C-DTPA in human volunteers after inhalation or intravenous injection // Health Physics. 1983. No 44 (1). P. 45-52.
20. Konzen K., Brey R. Development of the Plutonium-DTPA biokinetic model // Health Physics. 2015. Vol. 108 (6). P. 565-573.
21. Konzen K., Brey R. and Miller S. Plutonium-DTPA model application with USTUR cases 0269 // Health Physics. 2016. Vol. 110 (1). P.59-65.
22. Breustedt B., Blanchardon E., Berard P., et al. Biokinetic modeling of DTPA decorporation therapy: the CONRAD approach // Radiation Protection Dosimetry. 2009. 134. P. 38-48.
23. Breustedt B., Blanchardon E., Berard P., et al. The CONRAD approach to biokinetic modeling of DTPA decorporation therapy // Health Physics. 2010. Vol. 99(4). P. 547-552.
24. Juliao L.M., Melo Q.C., de O. Sousa W., Santos M.S., Fernandes P.C.P. Uncertainty on faecal analysis on dose assessment // Radiation Protection Dosimetry. 2007. Vol. 127, No 1-4. P. 421-424.
25. Плотнокова Л.А., Байсоголов Г.Д., Дощенко В.Н. Влияние пентамина и тетоксамина на ускорение выведения плутония из организма человека // Бюллетень радиационной медицины. 1962. № 3. С. 123-129.
26. James A.C., Sasser L.B. Stuit D.B., Glover S.E. and Carbaugh E.H. USTUR whole body case 0269: demonstrating effectiveness of I.V. Ca-DTPA for Pu // Radiation Protection Dosimetry. 2007. Vol. 127, No 1-4. P. 449-455.
27. Konzen K., Brey R., and Miller S. Plutonium-DTPA model application with USTUR Case 0269 // Health Physics. 2016. Vol. 110, No 1. P. 59-65.
28. Leggett R.W., Eckerman K.F., Khokhryakov V.F., Suslova K.G., Krahenbuhl M.P., Miller S.C. Mayak worker study: An improved biokinetic model for reconstructing doses from internally deposited plutonium // Radiatation Research. 2005. 164. P. 111-122.
29. Lataillade G., Verry M., Rateau G. Translocation of Pu from rat and monkey lung after inhalation of industrial plutonium oxide and mixed U and Pu oxide // International Journal of Radiation Biology. 1995. Vol. 67. P. 373-380.
30. Ramounet B., Matton S., Guezingar-Liebard F., et al. Comparative biokinetics of plutonium and americium after inhalation of PuO₂ and mixed oxides (U, Pu)O₂ in rat // International Journal of Radiation Biology. 2000. Vol. 76. P. 215-222.
31. Stanley J.A., Eidson A.F., Mewhinney J.A. Distribution, retention and dosimetry of plutonium and americium in the rat, dog and monkey after inhalation of an industrial-mixed uranium and plutonium oxide aerosol // Health Physics. 1982. Vol. 43. P. 521-530.
32. Foster P.P. Study of a plutonium oxide fuel inhalation case // Radiation Protection Dosimetry. 1991. Vol. 38. P. 141-146.

Поступила: 28.08.2025

Соколова Александра Борисовна – кандидат биологических наук, главный научный сотрудник, курирующий вопросы радиационной безопасности, Южно-Уральский федеральный научно-клинический центр медицинской биофизики Федерального медико-биологического агентства. **Адрес для переписки:** 456783, Россия, Челябинская область, Озерск, Озерское шоссе, д. 19; E-mail: sokolova@subi.su
ORCID: 0000-0002-6036-4178

Ефимов Александр Владимирович – начальник отдела, научный сотрудник, Южно-Уральский федеральный научно-клинический центр медицинской биофизики Федерального медико-биологического агентства, Озерск, Россия
ORCID: 0000-0003-1110-6559

Ишунина Мария Владимировна – заведующий лабораторией, младший научный сотрудник, Южно-Уральский федеральный научно-клинический центр медицинской биофизики Федерального медико-биологического агентства, Озерск, Россия
ORCID: 0000-0002-0737-4131

Сыпко Сергей Алексеевич – заведующий лабораторией, научный сотрудник, Южно-Уральский федеральный научно-клинический центр медицинской биофизики Федерального медико-биологического агентства, Озерск, Россия
ORCID: 0000-0002-8425-9460

Для цитирования: Соколова А.Б., Ефимов А.В., Ишунина М.В., Сыпко С.А. Динамика выведения плутония с мочой и калом на примере случаев острого ингаляционного поступления промышленных соединений плутония // *Радиационная гигиена*. 2026. Т. 19, № 1. С. 24–33. DOI: 10.21514/1998-426X-2026-19-1-24-33

Dynamics of plutonium excretion with urine and feces using cases of acute inhalation intake of industrial plutonium compounds as an example

Alexandra B. Sokolova, Alexander V. Efimov, Mariya V. Ishunina, Sergey A. Sypko

Southern Urals Federal Research and Clinical Center for Medical Biophysics of the Federal Medical Biological Agency, Ozyorsk, Russia

Monitoring internal doses from plutonium is most effectively accomplished by an indirect method based on the interpretation of nuclide activity measurements in excreta using biokinetic and dosimetric models. Currently, Russian Federation regulatory documents utilize the models presented by the International Commission on Radiological Protection in Publications 30, 66, and 67, while the International Commission on Radiological Protection has developed new models and approaches presented in Publications 130, 134, 137, and 141. The aim of this study was to demonstrate the actual dynamics of plutonium excretion in urine and feces in comparison with calculated data upon the intake of plutonium as part of an industrial compound of complex isotopic composition. Materials and Methods: The initial data for the study were the results of determining the activity of plutonium in daily amounts of urine and feces of three workers with acute inhalation intake of industrial plutonium compounds as a result of an emergency. Results and Discussion: For each case, the most suitable scenario (model and set of physicochemical properties of the compound) was selected using the Akaike criterion, depending on the initial data used for the calculation. The calculations were performed based on the results of plutonium activity measurements in urine, the results of plutonium activity measurements in feces, and the results of plutonium activity measurements in urine and feces simultaneously. The statistical analysis performed showed that the choice of the most suitable model and set of physicochemical properties of the compound was determined by the choice of initial data. In one case, none of the models adequately explained the observed levels of plutonium in urine and feces. Conclusion: There is undoubtedly a current lack of knowledge regarding the metabolism of industrial plutonium compounds, including those present at new fuel production sites. This requires extensive research into both the biokinetics and physicochemical properties of industrial plutonium compounds.

Key words: plutonium, biokinetic model, inhalation intake.

Authors' personal contribution

Sokolova A.B. provided general management of the project, prepared a draft of the manuscript and arranged the final version of the manuscript for publication in the journal.

Efimov A.V. analyzed of the initial data, edited the intermediate version of the manuscript.

Ishunina M.V. prepared the materials and methods section and conducted an analysis of the initial data.

Sypko S.A. prepared measuring instruments and performed measurements, analyzed of the literature data and edited the intermediate version of the manuscript.

Acknowledgments

The authors would like to thank the A.B. Dzhunushaliev for assistance in performing statistical analysis, and the reviewers for their thorough analysis of the article.

Alexandra B. Sokolova

Southern Urals Federal Research and Clinical Center for Medical Biophysics

Address for correspondence: 19, Ozyorskoe Shosse, Ozyorsk, Chelyabinsk Oblast, 456783, Russia; E-mail: sokolova@subi.su

Conflict of interests

The authors declare no conflict of interest in the conducting of the work and preparation of this article.

Sources of funding

The work was carried out within the framework of the Government contract "Industrial radiation and its long-term medical consequences" and the population of adjacent territories" №11.001.22.800 from 15.06.2025 code "Consequences 25-27", funded by the Federal Medical and Biological Agency of Russia.

References

1. ICRP. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. *Annals of the ICRP*. 2007;37(2-4).
2. ICRP. Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30, Part 1. Limits for intakes of radionuclides by workers. *Annals of the ICRP*. 1979;2(3/4).
3. ICRP Publication 30, Supplement to Part 1. Ann. ICRP 3(1-4). ICRP. Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30, Part 2. *Annals of the ICRP*. 1980;4(3/4).
4. ICRP. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66. *Annals of the ICRP*. 1994;24(1-3).
5. ICRP. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2. Ingestion dose coefficients. ICRP Publication 67. *Annals of the ICRP*. 1993;23(3/4).
6. ICRP. Dose coefficients for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 68. *Annals of the ICRP*. 1994;24(4).
7. ICRP. Individual monitoring for internal exposure of workers – replacement of ICRP Publication 54. ICRP Publication 78. *Annals of the ICRP*. 1997;27(3/4).
8. ICRP. Occupational Intakes of Radionuclides: Part 1. ICRP Publication 130. *Annals of the ICRP*. 2015;44(2).
9. ICRP. Occupational intakes of radionuclides: Part 2. ICRP Publication 134. *Annals of the ICRP*. 2016;45(3/4).
10. ICRP. Occupational intakes of radionuclides: Part 3. ICRP Publication 137. *Annals of the ICRP*. 2017;46(3/4).
11. ICRP. Occupational intakes of radionuclides: Part 4. ICRP Publication 141. *Annals of the ICRP*. 2019;48(2/3).
12. Motulsky HJ, Christopoulos A. Fitting models to biological data using linear and nonlinear regression. A practical guide to curve fitting. San Diego. CA: GraphPad Software Inc. 2003; 351 p.
13. Ayvazyan SA, Enyukov IS, Meshalkin LD. Applied statistics: Modeling basics and primary data processing: Reference Book. Moscow: Finance and Statistics; 1983. 471 p. (In Russian).
14. ICRP. Human alimentary tract model for radiological protection. ICRP Publication 100. *Annals of the ICRP*. 2006;36(1/2).
15. Khalturin GV, Lyubchansky ER, Plotnikova LA, Demina GA. Determination of skeletal and systemic content of plutonium and neptunium in the human body in case of accidental intake of their soluble and relatively soluble compounds. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti = Radiation safety issues*. 2003; Special Edition: 71-77. (In Russian).
16. Hall RM, Poda GA, Fleming RR, Smith JA. A mathematical model for estimation of plutonium in the human body from urine date influenced by DTPA therapy. *Health Physics*. 1978;34: 419-431.
17. Bailey BR, Eckerman KF, Townsend LW. An analysis of a puncture wound case with medical intervention. *Radiation Protection Dosimetry*. 2003;105: 509–512.
18. Durbin PW. and Schmidt C. Predicting the kinetics of chelating agents in man from animal data. *Health Physics*. 1989;57: 165-174.
19. Stather JW, Smith H, Bailey MR, Birchall A, Bulman A, Crawley FEH. The retention of ¹⁴C-DTPA in human volunteers after inhalation or intravenous injection. *Health Physics*. 1983;44(1): 45–52.
20. Konzen K, Brey R. Development of the Plutonium-DTPA biokinetic model. *Health Physics*. 2015;108(6): 565-573.
21. Konzen K, Brey R, Miller S. Plutonium-DTPA model application with USTUR cases 0269. *Health Physics*. 2016;110(1): 59-65.
22. Breustedt B, Blanchardon E, Berard P, Fritsch P, Guissani A, Lopez M, et al. Biokinetic modeling of DTPA decorporation therapy: the CONRAD approach. *Radiation Protection Dosimetry*. 2009;134: 38-48.
23. Breustedt B, Blanchardon E, Berard P, Fritsch P, Guissani A, Lopez M, et al. The CONRAD approach to biokinetic modeling of DTPA decorporation therapy. *Health Physics*. 2010;99(4): 547-552.
24. Juliao LM, Melo QC, de O. Sousa W, Santos MS, Fernandes PCP. Uncertainty on faecal analysis on dose assessment. *Radiation Protection Dosimetry*. 2007;127(1-4): 421–424.
25. Plotnikova LA, Baisogolov GD, Doshchenko VN. Effect of pentacyn and tetoxacyn on acceleration of plutonium elimination from human organism. *Byulleten radiatsionnoy meditsiny = Bulletin of Radiation Medicine*. 1962;3; 123-129. (In Russian).
26. James AC, Sasser LB, Stuit DB, Glover SE, Carbaugh EH. USTUR whole body case 0269: demonstrating effectiveness of I.V. Ca-DTPA for Pu. *Radiation Protection Dosimetry*. 2007;127(1-4): 449-455.
27. Konzen K, Brey R, Miller S. Plutonium-DTPA model application with USTUR Case 0269. *Health Physics*. 2016;110(1): P. 59–65.
28. Leggett RW, Eckerman KF, Khokhryakov VF, Suslova KG, Krahenbuhl MP, Miller SC. Mayak worker study: An improved biokinetic model for reconstructing doses from internally deposited plutonium. *Radiation Research*. 2005;164: 111–122.
29. Lataillade G, Verry M, Rateau G. Translocation of Pu from rat and monkey lung after inhalation of industrial plutonium oxide and mixed U and Pu oxide. *International Journal of Radiation Biology*. 1995;67: 373–380.
30. Ramounet B, Matton S, Guezingar-Liebard F, Abram MC, Rateau G, Grillon G, et al. Comparative biokinetics of plutonium and americium after inhalation of PuO₂ and mixed oxides (U, Pu)O₂ in rat. *International Journal of Radiation Biology*. 2000;76: 215–222.
31. Stanley JA, Eidson AF, Mewhinney JA. Distribution, retention and dosimetry of plutonium and americium in the rat, dog and monkey after inhalation of an industrial-mixed uranium and plutonium oxide aerosol. *Health Physics*. 1982;43: 521–530.
32. Foster PP. Study of a plutonium oxide fuel inhalation case. *Radiation Protection Dosimetry*. 1991;38: 141–146.

Received: August 28, 2025

For correspondence: Alexandra B. Sokolova – Candidate of Biological Sciences, Chief Researcher in Charge of Radiation Safety Issues, Science Southern Urals Research and Clinical Center for Medical Biophysics of the Federal Medical Biological Agency (19, Ozerskoe shosse, Ozersk, Chelyabinsk oblast, 456783, Russia; E-mail: sokolova@subi.su)
ORCID: 0000-0002-6036-4178

Alexander V. Efimov – Head of Department - Researcher, Science Southern Urals Research and Clinical Center for Medical Biophysics of the Federal Medical Biological Agency, Ozersk, Russia
ORCID: 0000-0003-1110-6559

Mariya V. Ishunina - Head of Laboratory – Junior Researcher, Southern Urals Research and Clinical Center for Medical Biophysics of the Federal Medical Biological Agency, Ozersk, Russia
ORCID: 0000-0002-0737-413

Sergey A. Sypko - Head of Laboratory – Researcher, Southern Urals Research and Clinical Center for Medical Biophysics of the Federal Medical Biological Agency, Ozersk, Russia
ORCID: 0000-0002-8425-9460

For citation: Sokolova A.B., Efimov A.V., Ishunina M.V., Sypko S.A. Dynamics of plutonium excretion with urine and feces using cases of acute inhalation intake of industrial plutonium compounds as an example. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2026. Vol. 19, No. 1. P. 24–33. (In Russian). DOI: 10.21514/1998-426X-2026-19-1-24-33