

Е.А. Дашанова^{1,2}, А.А. Молоканов¹, Е. А. Корнева¹

ОБОСНОВАНИЕ И ПРИМЕНЕНИЕ КРИТЕРИЯ ДОСТАТОЧНОСТИ ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЙ АКТИВНОСТИ РАДИОИЗОТОПОВ УРАНА В БИОЛОГИЧЕСКИХ ПРОБАХ

¹Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна ФМБА России, Москва.²Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Москва

Контактное лицо: Екатерина Александровна Дашанова: daschanofff@mail.ru

РЕФЕРАТ

Цель: Разработка критерия достаточности при измерениях активности радионуклидов урана в биологических пробах, проводимых в рамках программы индивидуального дозиметрического контроля (ИДК), на основе расчета неопределенности и характеристик пределов измерений.

Материал и методы: Предложен критерий достаточности, определяющий максимальное значение порога чувствительности (*порога принятия решения*) измерения, проводимого для целей ИДК, при котором имеет место факт непревышения основного предела дозы (ПД) или допустимого уровня (ДУ) с учетом неопределенности оценки дозы. Для расчета критерия достаточности при проведении измерений активности радионуклидов в объекте контроля и характеристик пределов измерений использован модельный подход, состоящий в разработке расчетной модели на основе функциональной зависимости измеряемой величины от входных величин, которые определяются процессом радиохимической подготовки и последующим спектрометрическим измерением пробы.

Результаты: Разработана модель расчета активности радионуклидов урана в биологической пробе на основе описания процедуры спектрометрического измерения активности радионуклидов урана ²³⁴U, ²³⁵U и ²³⁸U, осажденных электролитическим методом на мишени после экстракционно-хроматографического выделения их из пробы мочи с добавленным в нее образцовым радиоактивным раствором (ОРР) радионуклида ²³²U в качестве репера для определения эффективности выделения радионуклидов урана (химического выхода). Получены уравнения для вычисления значения *порога принятия решения* и *предела детектирования* суммарной активности указанных альфа-излучающих радионуклидов урана. На основе этих уравнений определена зависимость *порога принятия решения* и *предела детектирования* от времени измерения при известных исходных данных, что позволяет планировать продолжительность измерений, при которой активность радионуклидов урана в пробе может быть определена достоверно или при котором будет обеспечен критерий достаточности метода измерения (необходимый в том случае, когда активность не выявляется, то есть результат измерения меньше *порога принятия решения*). На основе реального примера спектрометрического измерения активности радионуклидов урана в пробе проведен расчет значений активности радионуклидов урана ²³⁴U, ²³⁵U и ²³⁸U и соответствующих характеристик пределов измерений.

Заключение: Обеспечение выполнения критерия достаточности при измерениях активности радионуклидов урана в биологических пробах для целей ИДК достигается за счет правильного выбора времени измерения пробы, которое устанавливается путем анализа значений характеристик пределов измерения суммарной активности рассматриваемых альфа-излучающих радионуклидов урана ²³⁴U, ²³⁵U и ²³⁸U: *порога принятия решения* и *предела детектирования*.

Ключевые слова: индивидуальный дозиметрический контроль, альфа-спектрометрия, критерий достаточности, порог принятия решения, предел детектирования, пределы доверительного интервала

Для цитирования: Дашанова Е.А., Молоканов А.А., Корнева Е.А. Обоснование и применение критерия достаточности для измерений активности радиоизотопов урана в биологических пробах // Медицинская радиология и радиационная безопасность. 2021. Т. 66. № 4. С.70–76.

DOI: 10.12737/1024-6177-2021-66-4-70-76

Введение

Целью индивидуального дозиметрического контроля (ИДК) является определение степени соблюдения принципов радиационной безопасности и требований нормативов, в том числе демонстрация факта непревышения установленных основных пределов доз (ПД) и допустимых уровней (ДУ) [1, 2]. Из этого следует, что в контролируемых условиях основной задачей ИДК внутреннего облучения персонала является оценка индивидуальной ожидаемой эффективной дозы (ОЭД) у каждого работника за счет поступления радионуклидов в каждом календарном году. Это позволяет определить, был ли превышен для данного работника установленный предел дозы. Задача оценки индивидуальной ожидаемой эффективной дозы (ОЭД) у каждого работника в каждом календарном году, при ингаляционном поступлении техногенных радионуклидов урана решается на основе проведения регулярных измерений активности радионуклидов в биопробах человека (в основном, в суточном диурезе).

При планировании измерений в рамках ИДК ключевыми характеристиками, определяющими объем контроля и его стоимость, являются частота и порог чувствитель-

ности измерений (порог принятия решения) [3]. В данном случае, порог принятия решения является характеристикой спектрометрического метода определения радионуклидов урана в биологических пробах мочи и обуславливает критерий достаточности при измерениях, проводимых в рамках программы ИДК. Критерием достаточности метода измерения активности радионуклидов в объекте контроля является такое значение *порога принятия решения* y^* , при котором верхняя граница дозы с учетом неопределенности, $E_{95}(y^*, \Delta_{y^*})$, не превысит предел дозы (ПД) или заданный допустимый уровень (УД) [2, 3]:

$$E_{95}(y^*, \Delta_{y^*}) = УД \leq ПД \quad (1)$$

При этом, $E_{95}(y^*, \Delta_{y^*}) \neq E(y^* + \Delta_{y^*})$, так как при расчете дозы учитывается не только неопределенность результата измерения, но и неопределенность других факторов, используемых при интерпретации измерений, включая частоту измерений. Критерий достаточности (1) определяет такое значение порога принятия решения, достижимое при применении данного метода измерения, при котором с заданной вероятностью можно утверждать, что индивидуальная ОЭД работника не превышает значения ПД или ДУ с учетом неопределенности метода изме-

рения и метода интерпретации результата измерения в единицах ОЭД, то есть $OED \leq E_{95}(y^*, \Delta_{y^*}) = U_d \leq PD$. Тогда цель ИДК будет достигнута даже в том случае, когда измеряемая активность не превышает порог принятия решения метода измерения и значение ОЭД не может быть определено достоверно. Для рассматриваемого случая ИДК на урановом производстве требования к порогу принятия решения усложняются, поскольку активности изотопов урана в моче зависят от типа соединений урана, находящихся в воздухе рабочих помещений. В целом, достаточным является значение $y^* = 4$ мБк в суточном количестве мочи (СКМ) для суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов урана [2, 3].

Порог принятия решения (decision threshold) определяется как фиксированное значение y^* измеряемой величины, количественно выражающей физический эффект, при превышении которого измерение действительно отражает наличие данного физического эффекта [4]. Если результат измерения меньше y^* , то он не подтверждает наличие данного физического эффекта, тем не менее нельзя заключить, что эффект отсутствует. Поскольку в данном случае (спектрометрическое измерение активности радионуклидов урана) значение y^* зависит от продолжительности измерения пробы ($t_{изм}$) и уменьшается приблизительно пропорционально $1/\sqrt{t_{изм}}$, то достичь необходимого значения y^* можно путем увеличения времени измерения пробы. Однако увеличение времени измерения проб приводит к уменьшению производительности и увеличению стоимости метода ИДК, и в случае, когда результат измерения активности радионуклидов урана превышает y^* , возникает вопрос: при каком значении $t_{изм}$ величина активности радионуклидов урана в пробе может быть определена достоверно и какова неопределенность или точность измерения этой величины? Для этого используются следующие характеристики пределов измерений: *предел детектирования* и *пределы достоверного интервала*.

Предел детектирования (detection limit) – это наименьшее истинное значение искомой величины $y^\#$, для которого с установленной вероятностью $1 - \beta$ будет получен в условиях данного измерения результат, превышающий *порог принятия решения* y^* [4]. Из этого определения следует, что если при определенном $t'_{изм}$ результат измерения превышает предел детектирования $y^\#$, то с заданной вероятностью можно утверждать, что величина активности радионуклидов урана в пробе может быть определена достоверно и, таким образом, данное время измерения пробы будет достаточным.

Пределы достоверного интервала (limits of the confidence interval) – это значения, которые определяют доверительный интервал, содержащий истинное значение искомой величины с заданной вероятностью [4]. Данная характеристика выражает неопределенность или точность (погрешность, в соответствии с определением выше) измерения величины активности радионуклидов урана в пробе.

Материал и методы

В основу оценки неопределенности измерений положен модельный подход. Суть модельного подхода заключается в следующем [4]: составляется модельное уравнение, демонстрирующее функциональную зависимость измеряемой величины от входных величин:

$$Y = f(X_1, X_2, X_3, \dots, X_n), \tag{2}$$

где, $X_1, X_2, X_3, \dots, X_n$ – входные величины; n – номер входной величины; f – вид функциональной зависимости.

Первичный результат измерения y величины Y получается путем замены входных величин $X_1, X_2, X_3, \dots, X_n$ на их оценки $x_1, x_2, x_3, \dots, x_n$:

$$y = f(x_1, x_2, x_3, \dots, x_n), \tag{2}$$

Если входные величины X_i измеряются независимо, то стандартную неопределенность $u(y)$ измеряемой величины, связанную с первичным результатом измерения y , вычисляют согласно уравнению:

$$u(y) = \sqrt{\sum_{i=1}^m \left(\frac{\partial f}{\partial X_i} \right)^2 \cdot u^2(x_i)}, \tag{4}$$

где $u(x_i)$ – стандартная неопределенность, связанная с оценкой x_i входной величины X_i .

В уравнении (4) оценки x_i должны быть заменены входными величинами X_i в частных производных от функции f . Определение оценок x_i и соответствующих стандартных неопределенностей $u(x_i)$, проводят в соответствии с ISO/IEC Guide 98-3 [5] или ГОСТ 34100.3-2017/ ISO/IEC Guide 98-3:2008 [6].

Порог принятия решения y^* , согласно определению выше, устанавливается таким образом, что в случаях, когда результат измерения превышает порог принятия решения y^* , вероятность того, что истинное значение измеряемой величины равно нулю (ошибки первого рода), меньше или равна выбранной вероятности α (обычно принимают значение $\alpha = 0,05$ или 5 %):

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot u^\%(0), \tag{5}$$

где $k_{1-\alpha}$ – квантиль стандартного нормального распределения для вероятности $1-\alpha$, $k_{1-\alpha}$ при $\alpha = 0,05$; $u^\%(0)$ – стандартная неопределенность оценки случайной величины Y как функции истинного значения измеряемой величины $y^\%$ при значении $y^\% = 0$.

Функция $u^\%(y^\%)$ часто имеет довольно медленный рост при увеличении $y^\%$. Поэтому замена $u^\%(y^\%) = u(y_i)$ является достаточной для таких случаев, в особенности если первичный результат измерения y_i искомой величины $y^\%$ не намного больше соответствующей стандартной неопределенности $u(y_i)$ [4]. Поскольку в рассматриваемом случае (спектрометрическое измерение активности радионуклидов урана) это условие выполняется, то выражение для порога принятия решения можно переписать следующим образом:

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot u(y_i) = k_{1-\alpha} \cdot u(y_{back}), \tag{6}$$

где y_{back} – это результат измерения y_i при $y^\% = 0$, то есть результат измерения фона.

Предел детектирования $y^\#$, согласно определению выше, это наименьшее истинное значение искомой величины $y^\%$, для которой с установленной вероятностью $1 - \beta$ будет получен в условиях данного измерения результат, превышающий *порог принятия решения* y^* . В этом случае вероятность принятия ошибочного решения, что физический эффект отсутствует (ошибки второго рода) не превышает заданного значения β (обычно принимают значение $\beta = \alpha = 0,05$ или 5%). Предел обнаружения $y^\#$ находят как минимальное решение следующего уравнения [4]:

$$y^\# = y^* + k_{1-\beta} \cdot u^\%(y^\%) \tag{7}$$

или с учетом замены $u^\%(y^\%) = u(y_i)$ и уравнения (6):

$$y^\# = k_{1-\alpha} \cdot u(y_{back}) + k_{1-\beta} \cdot u(y^\#), \quad (8)$$

где $k_{1-\beta}$ – квантиль стандартного нормального распределения для вероятности $1-\beta$, $k_{1-\beta} = 1,65$ при $\alpha = 0,05$.

Пределы доверительного интервала предусмотрены для физического эффекта, признанного имеющим место в соответствии с порогом принятия решения (5), таким образом, что доверительный интервал содержит истинное значение измеряемой величины с указанной вероятностью $1-\gamma$. Пределы доверительного интервала учитывают тот факт, что измеряемая величина неотрицательна.

При значении первичного результата измерения y и стандартной неопределенности $u(y)$, нижний предел доверительного интервала, $y^<$, и верхний предел доверительного интервала, $y^>$, определяют по формулам [4]:

$$y^< = y - k_p \cdot u(y), \quad p = \omega \cdot (1 - \gamma/2) \quad (9)$$

$$y^> = y + k_q \cdot u(y), \quad q = 1 - \omega \cdot \gamma/2 \quad (10)$$

$$\omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{y/u(y)} \exp\left(-\frac{v^2}{2}\right) dv = \Phi[y/u(y)]. \quad (11)$$

Для определения ω , p и k_p , q и k_q используется функция стандартного нормального распределения $\Phi(t)$, где $t=y/u(y)$. При этом, $\omega = \Phi(t)$, $k_p=t$ для $\Phi(t)=p$. Значения $\Phi(t)$ определяют, используя табулированные значения стандартного нормального распределения [4]. В общем случае, пределы доверительного интервала расположены несимметрично относительно результата измерения y , но вероятности того, что истинное значение измеряемой величины меньше, чем $y^<$ и больше, чем $y^>$ одинаково равны $\gamma/2$. При $y \geq 4 \cdot u(y)$ можно принять значение $\omega=1$, тогда пределы доверительного интервала будут расположены симметрично относительно и можно использовать выражение: $y - k_{1-\gamma/2} \leq y \leq y + k_{1-\gamma/2}$. Обычно принимают значение $\gamma=0,05$, тогда $k_{1-\gamma/2} = 1,96$.

Результаты и обсуждение

Для расчета неопределенности и соответствующих характеристик пределов измерений разработана модель расчета активности радионуклидов урана в биологической пробе на основе описания процедуры спектрометрического измерения активности радионуклидов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U , осажденных электролитическим методом на мишени после экстракционно-хроматографического выделения их из пробы мочи с добавленным в нее рабочим радиоактивным раствором (РРР) радионуклида ^{232}U в качестве репера для определения эффективности выделения радионуклидов урана (химического выхода). На рис. 1 показан процесс приготовления пробы (мишени) для спектрометрического измерения. Для приготовления РРР используют образцовый радиоактивный раствор (ОРР) радионуклида ^{232}U с удельной активностью A_{RRSm} , Бк/г, массой m_{RRS} , г, путем переноса ОРР в мерную колбу и разбавления его раствором кислоты HNO_3 до нужной объемной активности РРР, A_{WRSv} , мБк/см³, которую определяют по результатам альфа-спектрометрических измерений. В стакан с пробой, полученной после экстракционно-хроматографического выделения урана из пробы мочи, добавляют РРР объемом V_{25} , см³, и активностью A_{WRS}^{add} , мБк, с помощью пипеточного дозатора на 25 мкл. Радионуклиды урана, содержащиеся в полученном растворе, осаждают электролитическим методом на стальной диск (мишень) для проведения альфа-спектрометрических измерений.

Альфа спектрометрические измерения активности радионуклидов урана, содержащихся на мишени, позволяют определить число импульсов, N_{232} , N_{234} , N_{235} , и N_{238} , в соответствующих энергетических диапазонах: ^{232}U (5225 – 5359) МэВ, ^{234}U (4630 – 4830) МэВ, ^{235}U (4345 – 4455) МэВ и ^{238}U (4055 – 4260) МэВ, путем обработки спектра, показанного на рис. 2.

Число импульсов, N_{238} , измеренное, например, в энергетическом диапазоне ^{238}U , формируется в соответствии со следующей моделью:

$$N_{238} = N_{sample/238} + N_{sample/238}^{add} + N_{camera/238}, \quad (12)$$

где $N_{sample/238}$ – число импульсов от ^{238}U , содержащегося на мишени до добавления в пробу репера; $N_{sample/238}^{add}$ – число импульсов от ^{238}U , содержащегося на мишени от добавленного в пробу репера; $N_{camera/238}$ – число импульсов в энергетическом диапазоне ^{238}U , обусловленных загрязнением камеры и погрешностью электроники.

Как было отмечено выше при обсуждении критерия достаточности, значение минимально необходимого времени измерения, $t'_{изм}$, при котором активность радионуклидов урана в пробе может быть определена достоверно, зависит от величины предела обнаружения $y^\#$, вычисляемая согласно (8) через значение результата измерения фона, y_{back} , число импульсов которого в энергетическом диапазоне ^{238}U , с учетом расчетной модели (12) и того, что $N_{sample/238} = 0$, выражается формулой:

$$N_{back/238} = N_{WRS/238}^{add} + N_{camera/238} \quad (13)$$

$N_{WRS/238}^{add}$ и $N_{camera/238}$ определяют по результатам независимых альфа-спектрометрических измерений. Распределение числа импульсов, регистрируемых в энергетическом диапазоне радионуклида ^{238}U за фиксированное время измерения $t'_{изм}$ подчиняется закону Пуассона, для которого справедливо соотношение $u(N) = \sqrt{N}$.

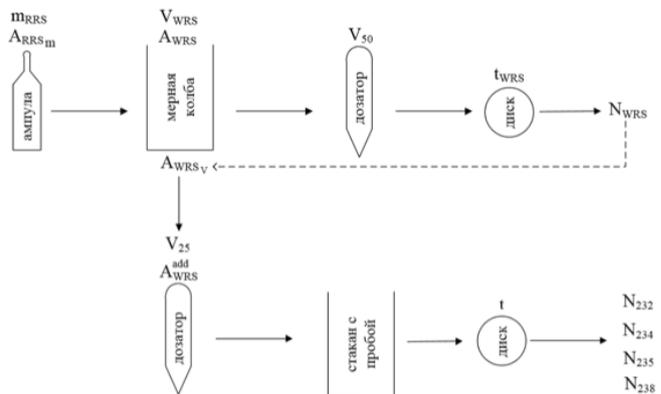


Рис. 1. Процедура подготовки пробы для спектрометрических измерений
Fig. 1. Sample preparation procedure for spectrometric measurements

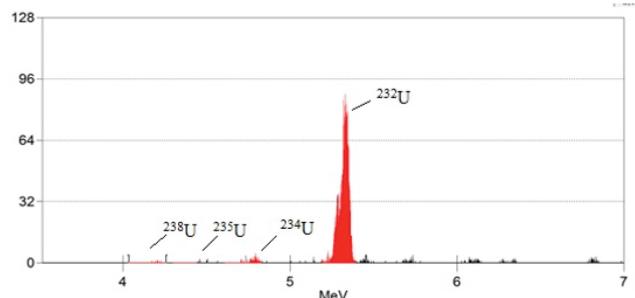


Рис. 2. Спектр активности радионуклидов урана, на мишени
Fig. 2. Activity spectrum of uranium radionuclides contained on the target

Тогда

$$u(N_{back/238}) = \sqrt{N_{WRS/238}^{add} + N_{camera/238}} \quad (14)$$

и для суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U получим:

$$u(N_{back/\sum Ri}) = \sqrt{\sum_i N_{WRS/Ri}^{add} + N_{camera/Ri}}, \quad (15)$$

где индекс i обозначает суммирование числа импульсов, измеренных в соответствующих энергетических диапазонах радионуклидов R_i : ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U , а индекс $\sum Ri$ – их сумму.

Заменяя обозначение y_{back} в уравнениях (6) и (8) на $N_{back/\sum Ri}$, получим уравнения для вычисления значения порога принятия решения и предела детектирования суммарной активности указанных альфа-излучающих радионуклидов урана $y_{\Sigma}^{\#}$ в единицах числа импульсов, измеренных в энергетических диапазонах радионуклидов ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U :

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot u(N_{back/\sum Ri}), \quad (16)$$

$$y_{\Sigma}^{\#} = k_{1-\alpha} \cdot u(N_{back/\sum Ri}) + k_{1-\beta} \cdot u(y_{\Sigma}^{\#}). \quad (17)$$

Для вычисления значения предела обнаружения $y^{\#}$ в единицах активности нужно разделить полученное значение в импульсах $y_{\Sigma}^{\#}$ (имп) на коэффициент: $R_{chem} \cdot \epsilon_{\alpha-det} \cdot t_{изм}$:

$$y_{\Sigma}^* (\text{Бк}) = \frac{y_{\Sigma}^{\#} (\text{имп})}{R_{chem} \cdot \epsilon_{\alpha-det} \cdot t_{изм}}, \quad (18)$$

$$y_{\Sigma}^{\#} (\text{Бк}) = \frac{y_{\Sigma}^{\#} (\text{имп})}{R_{chem} \cdot \epsilon_{\alpha-det} \cdot t_{изм}}. \quad (19)$$

Таблица 1

Исходные данные для определения зависимости порога принятия решения и предела детектирования от времени измерения $t_{изм}$
Input data for determining the dependence of the decision threshold and the detection limit on the measurement time $t_{изм}$

| Параметр | Измеряемые радионуклиды урана | | |
|--|-------------------------------|------------------|------------------|
| | ^{234}U | ^{235}U | ^{238}U |
| $n_{WRS/Ri}^{add}$, имп/с | 4,63E-05 | 0,0 | 0,0 |
| $n_{cam/Ri}$, имп/с | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| R_{chem} , отн.ед. | 0,428 | 0,428 | 0,428 |
| $\epsilon_{\alpha-det}$, имп/(Бк • с) | 0,102 | 0,102 | 0,102 |

Таблица 2

Результаты расчета порога принятия решения y_{Σ}^* и предела детектирования $y_{\Sigma}^{\#}$ от времени измерения $t_{изм}$ для определения суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U
The results of calculating the decision threshold y_{Σ}^* and the detection limit $y_{\Sigma}^{\#}$ from the measurement time, to determine the total activity of alpha-emitting uranium radioisotopes ^{234}U , ^{235}U and ^{238}U

| $t_{изм}$, ч | y_{Σ}^* , мБк | | $y_{\Sigma}^{\#}$, мБк | |
|---------------|----------------------|-------|-------------------------|-------|
| | На мишени | В СКМ | На мишени | В СКМ |
| 1 | 22 | 70 | 52* | 165 |
| 3 | 8,6 | 28 | 19* | 61 |
| 6 | 4,3 | 14 | 10* | 30 |
| 12 | 2,5 | 7,9 | 5,2 | 17 |
| 24 | 1,5 | 4,9 | 3,0* | 9,5 |
| 36 | 1,2 | 3,7 | 2,2 | 7,0 |
| 48 | 1,0* | 3,1 | 1,8 | 5,7 |

Примечание: * – Требуемые значения y_{Σ}^* и $y_{\Sigma}^{\#}$ при измерении пробы (мишени) за реальное время измерения пробы
* – Required values y_{Σ}^* and $y_{\Sigma}^{\#}$ when measuring a sample (target) in real time of sample measurement

Используя уравнения (18) и (19), можно определить зависимость порога принятия решения и предела детектирования от времени измерения $t_{изм}$, при известных исходных данных, что позволяет планировать время измерения $t'_{изм}$, при котором активность радионуклидов урана в пробе может быть определена достоверно или при котором будет обеспечен критерий достаточности метода измерения (необходимый в том случае, когда активность не выявляется, то есть результат измерения меньше y^*). Для этого необходимы исходные данные конкретной процедуры спектрометрического измерения: скорость образования числа фоновых импульсов $n_{WRS/Ri}^{add}$ и $n_{cam/Ri}$ в энергетических диапазонах радионуклидов ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U ; химический выход R_{chem} и энергетическая эффективность альфа-детектора, $\epsilon_{\alpha-det}$. В табл. 1 представлен пример таких исходных данных.

При определении порога принятия решения y_{Σ}^* по формуле (16) учитывают, что значение $N_{WRS/Ri}^{add} = n_{WRS/Ri}^{add} \cdot t_{изм}$, $N_{camera/Ri} = n_{cam/Ri} \cdot t_{изм}$, а сумма $N_{WRS/Ri}^{add} + N_{camera/Ri}$ для каждого радионуклида урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U не должна быть меньше 1 при любом значении $t_{изм}$ [4]. Также при анализе результатов расчета необходимо учитывать требования критерия достаточности (1) для случая, когда активность не выявляется. Как было отмечено выше, в этом случае достаточным является значение $y^* = 4$ мБк в СКМ для суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов урана. Однако для анализа пробы обычно берут часть объема СКМ. В рассматриваемом примере принято отношение объема СКМ к объему пробы равное $1,6/0,5$ (литров) = 3,2, тогда для измеряемой пробы достаточным является значение $y^* = 4/3,2 = 1,25$ мБк в 0,5 л пробы.

Для приведенных в табл. 1 исходных данных получим следующую зависимость порога принятия решения y_{Σ}^* и предела детектирования $y_{\Sigma}^{\#}$ от времени измерения, $t_{изм}$, для определения суммарной активности указанных альфа-излучающих радионуклидов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U (табл. 2).

Из табл. 2 видно, что для принятых исходных данных (табл. 1) и учитывая, что практически реальное время измерения пробы составляет значения до 6 ч (рабочее время), 1 сут, 2 сут и т. д., продолжительность измерения пробы для достижения требований критерия достаточности ($y^* = 4/3, 2 = 1,25$ мБк) практически равна 2 сут, но если в течение 1 (3, 6 или 24) часов выявляется суммарная активность радионуклидов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U более 52 (19, 10 или 3) мБк соответственно, то этого времени измерения будет достаточно для достоверного определения данной искомой величины. Необходимо отметить, что указанные значения достаточного времени измерения определяют в процессе измерения пробы и дают минимально возможное значение $t'_{изм}$ для данной пробы, но не ограничивают его, если увеличение времени измерения пробы возможно в рамках ИДК с учетом принципа оптимизации уровня облучения персонала [1].

Из приведенных в табл. 1 значений исходных данных следует, что значения y^*_Σ и $y^\#_\Sigma$ для описанного выше процесса измерения зависят, практически, от параметров $N_{WRS/Ri}^{add}$ и R_{chem} и $\epsilon_{\alpha-det}$. При этом параметры R_{chem} и $\epsilon_{\alpha-det}$ не могут быть изменены, а параметр $N_{WRS/Ri}^{add}$ зависит от количества добавленного репера ^{232}U . Это дает возможность оптимизировать количество добавляемого в пробу репера, с учетом требуемого значения неопределенности $u(R_{chem})$, с целью уменьшения значений величин y^*_Σ и $y^\#_\Sigma$ и, тем самым, уменьшения необходимого времени измерения пробы.

Как результат измерений необходимо рассчитать значения активности радионуклидов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U в пробе и их неопределенности, в качестве которых указываются *пределы доверительного интервала*, определяемые по формулам (9) – (11). С учетом модели (12) активность отдельного радионуклида (например, ^{238}U) в пробе определяется по следующей формуле:

$$A_{238} = \frac{N_{238} - N_{back/238}}{\epsilon_{\alpha-det} \cdot R_{chem} \cdot t} - A_{WRS/232}^{add} \cdot k_{238}, \quad (20)$$

где A_{238} – активность радионуклида ^{238}U в пробе, мБк;

Таблица 3

Исходные данные для определения измеренных значений активности радионуклидов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U и соответствующих пределов доверительного интервала
Input data for determining the measured values of the activity of uranium radionuclides ^{234}U , ^{235}U and ^{238}U and the corresponding limits of the confidence interval

| Параметр | Измеряемые радионуклиды урана | | |
|---|-------------------------------|------------------|------------------|
| | ^{234}U | ^{235}U | ^{238}U |
| N_{Ri} , имп | 48 | 0 | 5 |
| $N_{back/Ri}$, имп | 4 | 1* | 1* |
| $\epsilon_{\alpha-det}$, имп/(Бк·с) | 0,102 | 0,102 | 0,102 |
| $u(\epsilon_{\alpha-det})$, имп/(Бк·с) | 0,00427 | 0,00427 | 0,00427 |
| R_{chem} , отн.ед. | 0,428 | 0,428 | 0,428 |
| $u(R_{chem})$, отн.ед. | 0,0298 | 0,0298 | 0,0298 |
| $A_{WRS/232}^{add}$, Бк | 0,38 | 0,38 | 0,38 |
| $u(A_{WRS/232}^{add})$, Бк | 0,0186 | 0,0186 | 0,0186 |
| k_{Ri} , отн.ед. | 0,000598 | 0,0 | 0,0 |
| $u(k_{Ri})$, отн.ед. | 0,000299 | 0,0 | 0,0 |

Примечание: * – если $N_{back/Ri} = 0$, то принимают $N_{back/Ri} = 1$ [4]
 * – if $N_{back/Ri} = 0$, than take $N_{back/Ri} = 1$ [4]

N_{238} – число импульсов от пробы, определяемое спектрометром в энергетическом интервале радионуклида ^{238}U за время измерения активности пробы;

$N_{back/238}$ – число фоновых импульсов, определяемое спектрометром в энергетическом диапазоне ^{238}U за время измерения активности пробы;

$\epsilon_{\alpha-det}$ – эффективность регистрации альфа-детектора;

R_{chem} – химический выход;

t – время измерения пробы, с;

k_{238} – коэффициент пропорциональности, связывающий содержание радионуклидов ^{238}U и ^{232}U в аликвоте рабочего радиоактивного раствора (PPP);

$A_{WRS/232}^{add}$ – активность добавленного в пробу PPP в энергетическом диапазоне радионуклида ^{232}U , мБк.

Неопределенность расчетного значения величины A_{238} с учетом формулы (4) выражается следующим образом:

$$u_c(A_{238}) = \sqrt{\frac{1}{\epsilon_{\alpha-det}^2 \cdot R_{chem}^2 \cdot t^2} \left[\frac{N_{238} + N_{back/238} + (N_{238} - N_{back/238})^2}{\left(\frac{u^2(\epsilon_{\alpha-det})}{\epsilon_{\alpha-det}^2} + \frac{u^2(R_{chem})}{R_{chem}^2} \right)} \right] + k_{238}^2 \cdot u^2(A_{WRS/232}^{add}) + (A_{WRS/232}^{add})^2 \cdot u^2(k_{238})^2}, \quad (21)$$

где $u(\epsilon_{\alpha-det})$, $u(A_{WRS/232}^{add})$ и $u(k_{238})$ – стандартные неопределенности указанных в скобках величин; значения этих величин и их стандартные неопределенности определяют в результате независимых измерений; химический выход R_{chem} и его стандартную неопределенность $u(R_{chem})$ определяют по результату измерения спектра активности радионуклидов урана, содержащихся на мишени (как показано, например, на рис. 2, где вместе с измеряемыми радионуклидами урана показан пик реперного радионуклида ^{232}U).

Установление пределов доверительного интервала активности пробы подразумевает определение нижней и верхней границ доверительного интервала в соответствии с описанной выше процедурой по уравнениям (9) – (11). Для этого необходимо определить значения следующих

Таблица 4

Активность радиоизотопов урана (^{234}U , ^{235}U и ^{238}U) в пробе, соответствующие неопределенности и характеристики пределов измерений
 Activity of uranium radioisotopes (^{234}U , ^{235}U и ^{238}U) in a sample, corresponding uncertainties and characteristics of measurement limits

| Радионуклид урана | ^{234}U | ^{235}U | ^{238}U | Сумма |
|--|------------------|------------------|------------------|-------|
| Активность, мБк | 12,5 | 0,0 | 1,3 | 13,8 |
| Стандартная неопределенность, мБк | 2,1 | 0,65 | 0,61 | 2,2 |
| Нижний предел доверительного интервала, мБк | 8,4 | 0,0 | 0,29 | 9,8 |
| Верхний предел доверительного интервала, мБк | 16,7 | 1,5 | 2,5 | 18,6 |
| Порог принятия решения, мБк | 1,2 | 0,62 | 0,62 | 1,5 |
| Предел детектирования, мБк | 2,6 | 1,5 | 1,5 | 3,0 |

параметров исходных данных для каждого радионуклида урана (R_i): N_{R_i} , N_{back}/R_i ; $\epsilon_{\alpha-det}$; R_{chem} ; k_{R_i} ; $A^{add}_{WRS/232}$; $u(\epsilon_{\alpha-det})$; $u(R_{chem})$, $u(A^{add}_{WRS/232})$ и $u(k_{R_i})$. В табл. 3 представлены значения исходных данных для рассматриваемого примера.

Для приведенных в табл. 3 исходных данных и принятого значения вероятности для доверительного интервала $p = 0,95$, ($\gamma=0.05$) получим следующие результаты определения суммарной активности указанных альфа-излучающих радиоизотопов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U и их неопределенностей (табл. 4).

Заключение

Показано, что обеспечение выполнения критерия достаточности при измерениях активности радионуклидов урана в биологических пробах для целей ИДК достигается за счет правильного выбора продолжительности измерения пробы, которая устанавливается путем анализа значений характеристик пределов измерения суммарной активности рассматриваемых альфа-излучающих радиоизотопов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U – порога принятия решения y^*_{Σ} и предела детектирования $y^{\#}_{\Sigma}$.

Характеристики пределов измерения определяют путем использования модельного подхода к расчету активности радионуклидов в биологической пробе, позволяющего определить зависимость величин y^*_{Σ} и $y^{\#}_{\Sigma}$ от времени измерения, $t_{изм}$, при известных исходных данных, и планировать время измерения $t'_{изм}$, при котором активность радионуклидов урана в пробе может быть определена достоверно, то есть выполняется условие: $A_{\Sigma} \geq y^{\#}_{\Sigma}$, или при котором будет обеспечен критерий до-

статочности метода измерения: $y^*_{\Sigma} \leq 1,25$ мБк в пробе, в том случае, когда $A_{\Sigma} \leq y^*_{\Sigma}$, где A_{Σ} – суммарная активность радиоизотопов урана.

Модель расчета активности радионуклидов в биологической пробе определяется на основе описания процедуры спектрометрического измерения активности радиоизотопов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U , осажденных электролитическим методом на мишени после экстракционно-хроматографического выделения их из пробы мочи с добавленным в нее образцовым радиоактивным раствором (ОРР) радионуклида ^{232}U в качестве репера для определения эффективности выделения радиоизотопов урана (химического выхода).

Показано на конкретном примере, что для достижения требования критерия достаточности ($y^*_{\Sigma} \leq 1,25$ мБк в пробе) необходимое время измерения $t'_{изм}$ практически равно 2 сут, но если в течение 1 (3, 6 или 24) часов выявляется суммарная активность радиоизотопов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U более 52 (19, 10 или 3) мБк соответственно, то этого времени измерения будет достаточно для достоверного определения искомой величины A_{Σ} . Кроме того, анализ исходных данных указывает на возможность уменьшения значений величин y^*_{Σ} и $y^{\#}_{\Sigma}$ и, тем самым, уменьшения необходимой продолжительности измерения пробы $t'_{изм}$, путем оптимизации количества добавляемого в пробу репера.

На основе реального примера измерения активности радиоизотопов урана ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U в пробе проведен расчет значений активности радионуклидов урана и соответствующих характеристик пределов измерений.

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Финансирование. Исследование не имело спонсорской поддержки.

Участие авторов. Статья подготовлена с равным участием авторов.

Поступила: 16.02.2021. Принята к публикации: 20.04.2021.

Conflict of interest. The authors declare no conflict of interest.

Financing. The study had no sponsorship.

Contribution. Article was prepared with equal participation of the authors.

Article received: 16.02.2021. Accepted for publication: 20.04.2021.

Justification and Application of Sufficiency Criterion for Measuring the Activity of Uranium Radioisotopes in Biological Samples

E.A. Dashanova^{1,2}, A.A. Molokanov¹, E.A. Korneva¹

¹A.I. Burnasyan Federal Medical Biophysical Center, Moscow, Russia

²National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, Russia

Contact person: Ekaterina Alexandrovna Dashanova: daschanoff@mail.ru

ABSTRACT

Purpose: Ensuring the fulfillment of the sufficiency criterion when measuring the activity of uranium radionuclides in biological samples carried out within the individual monitoring programme by calculation of the uncertainty and characteristics limits for measurements.

Material and methods: The sufficiency criterion definition is given, which determines the maximum value of the decision threshold for measurements carried out for the individual monitoring of workers at which the fact of non-exceeding of the annual dose limit or permissible level takes place, taking into account the uncertainty of the dose assessment. A model approach is used to calculate the sufficiency criterion and characteristics limits when measuring the radioactive material excreted by individual workers. The model approach consisted in the development of a calculation model based on the functional dependence of measured input values on the process of radiochemical preparation and subsequent spectrometric measurement of the sample.

Results: A model has been developed for calculating the activity of uranium radionuclides ²³⁴U, ²³⁵U and ²³⁸U in a biological sample based on the description of the procedure for spectrometric measurement, which consisted in the deposition by the electrolytic method on the target after chromatographic extraction of uranium from the urine sample. The reference radioactive solution of the ²³²U radionuclide added to the sample as a reference point for determining the efficiency of uranium radionuclide separation (chemical yield). Equations are obtained for calculating the values of the decision threshold and the detection limit for the total activity of the above alpha-emitting uranium radionuclides. Using these equations, the dependence of the decision threshold and the detection limit on measurement time is determined for the given input data. This allows planning the measurement time at which the activity of uranium radionuclides in the sample can be determined reliably or at which the sufficiency criterion of the measurement method will be provided (necessary in the case when the activity is not detected, that is, the measurement result is less than the decision threshold). The values of the activity of uranium radionuclides ²³⁴U, ²³⁵U and ²³⁸U and the corresponding characteristics limits for the measurement were calculated on the basis of a real example of spectrometric measurement of the activity of uranium radionuclides in a sample.

Conclusion: Ensuring the fulfillment of the sufficiency criterion when measuring the activity of uranium radionuclides in biological samples is achieved by the correct determination of the sample measurement time. This is determined by time dependence analysis of the characteristics limits (the decision threshold and the detection limit) for the measurement of the total activity of the above alpha-emitting uranium radionuclides ²³⁴U, ²³⁵U and ²³⁸U.

Key words: individual monitoring programme, alpha spectrometry, sufficiency criterion, decision threshold, detection limit, confidence interval

For citation: Dashanova EA, Molokanov AA, Korneva EA. Justification and Application of Sufficiency Criterion for Measuring the Activity of Uranium Radioisotopes in Biological Samples. Medical Radiology and Radiation Safety. 2021;66(4):70-76.

DOI: 10.12737/1024-6177-2021-66-4-70-76

СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. Нормы радиационной безопасности НРБ-99/2009. Гигиенические нормативы СП 2.6.1.2523-09. М. 2009. 100 с.
2. МУ 2.6.1.065-14. Дозиметрический контроль профессионального внутреннего облучения. Общие требования.
3. Молоканов А.А., Кухта Б.А. Развитие системы контроля внутреннего облучения персонала – использование современных технологий // АНРИ. 2018. № 4. С. 2–14.
4. ISO 11929:2010(E). Determination of the Characteristic Limits (Decision Threshold, Detection Limit and Limits of the Confidence Interval) for Measurements of Ionizing Radiation – Fundamentals and Application. Geneva. 2010.
5. ISO/IEC Guide 98-3:2008(E). Guide to the Expression of Uncertainty in Measurements (GUM:1995) // Uncertainty of measurement. Geneva. Switzerland. 2008.
6. ГОСТ 34100.3-2017/ ISO/IEC Guide 98-3:2008 // Неопределенность измерения. Часть 3. / Руководство по выражению неопределенности измерений. Москва. Стандартинформ. 2018.

REFERENCES

1. Radiation Safety Standards NRB-99/2009. Hygienic Standards SP 2.6.1.2523-09. Moscow. 2009. 100 p. (In Russian).
2. MU 2.6.1.065-14. Dosimetric Control of Occupational Internal Exposure. General Requirements (In Russian).
3. Molokanov AA, Kukhta BA. Development of the Internal Dose Assessment System for the Monitoring of Workers – Use of Modern Technologies. ANRI. 2019; (4) : 38-50. (In Russian).
4. ISO 11929:2010(E). Determination of the Characteristic Limits (Decision Threshold, Detection Limit and Limits of the Confidence Interval) for Measurements of Ionizing Radiation – Fundamentals and Application. Geneva. 2010.
5. ISO/IEC Guide 98-3:2008(E). Guide to the Expression of Uncertainty in Measurements (GUM:1995). Uncertainty of measurement. Geneva. Switzerland. 2008.
6. State Standard 34100.3-2017/ ISO/IEC Guide 98-3:2008. Uncertainty of Measurement. Part 3. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurements. Moscow, Publ, Standardinform. 2018. (In Russian).