

УДК 614.8.086.52

Дифференцированный подход к оценке поступления трития и его соединений в организм человека

В. Г. Барчуков

ФГБУ «Государственный научный центр Российской Федерации –
Федеральный медицинский биофизический центр им. А. И. Бурназяна»
ФМБА России
barchval@yandex.ru

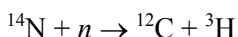
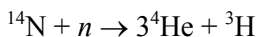
В статье рассмотрены основные свойства трития, влияющие на его радиотоксичность. Показано, что тритий может существовать в нескольких формах. Поступая в организм человека, каждая форма имеет разную способность формировать дозу. Это определяет необходимость количественной оценки каждой из форм, находящейся в воздухе рабочей зоны. С этой целью разработаны соответствующие методики, которые представлены в статье. Эти методики позволили оценить, в каких формах тритий находится в воздухе рабочей зоны на АЭС. В статье также представлены итоги эксперимента по оценке относительной биологической эффективности для оксида трития и [3H]-тимидина, и показано, что [3H]-тимидин вызывает на порядок больше нарушений в ДНК, по сравнению с аналогичной дозой рентгеновского излучения.

1. Общие сведения о тритии и его соединениях, определяющих вопросы безопасности при обращении с этим радионуклидом

Развитие атомной энергетики тесно связано с успешным решением ряда важных проблем по обеспечению радиационной безопасности, как персонала, так и населения, проживающего в зоне воздействия радиационно-опасного объекта (далее – РОО) [1]. При этом для окружающей среды вообще, и человека, в частности, воздействие РОО в повседневной деятельности определяется количественным и качественным составом сбросов и выбросов с этого объекта.

Следует отметить, что современные технологии позволяют максимально уловить из выбросов и сбросов радионуклиды, образующиеся в процессе работы РОО. Однако, имеющиеся в настоящее время технологии по выделению трития являются затратными и по экономическим причинам их применение не целесообразно.

Следует отметить, что образуется тритий, как естественным образом, так и в результате технической деятельности человека. В естественных условиях тритий образуется в основном, в результате взаимодействия частиц космических лучей с атомными ядрами молекул воздуха в верхних слоях атмосферы, в частности путем реакции [2]:



Искусственное происхождение трития в основном обусловлено тремя источниками. Это испытание ядерного оружия, ядерная индустрия и атомная энергетика. Большая часть трития в окружающей среде связана с испытаниями ядерного оружия в атмосфере. При этом образовавшийся тритий вступает в обмен с водяными парами и таким образом попадает в гидрологический цикл.

В ядерной индустрии тритий и его соединения образуются на заводах по переработке ядерного топлива, при работе тяжеловодных реакторов и на предприятиях, занятых производством трития. Если после прекращения испытаний ядерного оружия, к настоящему времени объем этого трития уже сопоставим с объемом природного трития и составляет 3,5 кг ($1,2 \cdot 10^{18}$ Бк) [3], то доля трития, образующегося в энергетических реакторах, постоянно возрастает в соответствии с ростом доли АЭС в производстве электроэнергии.

Образование трития в энергетических реакторах происходит за счет ряда процессов. В частности, тритий является продуктом тройного деления ядер ^{235}U . Также тритий образуется в ходе (n, γ)-реакции на ядрах дейтерия, находящегося в теплоносителе (вода) и при борном регулировании осуществляемом с целью коррекции водного режима на АЭС с реакторами типа ВВЭР в процессе захвата нейтронов ядрами В и Li, находящихся в теплоносителе (воде). Источником образования трития являются и ($n, ^3\text{H}$)-реакции быстрых нейтронов на ядрах ^{14}N , ^6Li , ^{40}Ca и других, присутствующих в различных материалах, используемых в конструкции реактора. Следует отметить, что на АЭС с реакторами типа РБМК тритий образуется в газе, заполняющем графитовую кладку в результате реакции $^3\text{He}(n, p)^3\text{H}$.

Образовавшийся тритий и его соединения мигрируют по технологическим системам и в итоге формируют сбросы и выбросы, которые неизбежно попадают во внешнюю среду, обуславливая дозовую нагрузку на население, проживающее в районе расположения радиационно опасного объекта. Эта нагрузка по данным [4] составляет 0,15–1,3 мкЗв, а по данным [5] 3–14 мкЗв. Однако если учесть, что она является доминирующей для населения, и с ростом атомной промышленности и энергетики будет только расти, то актуальной является оценка содержания трития и его соединений в окружающей среде.

Следует отметить, что тритий представляет собой радиоактивный изотоп водорода, и поэтому химически он ведет себя подобно водороду. Другими словами, вступает в те же химические реакции, что и водород, т. е. образует оксиды, органические соединения и т. д., которые вступают в химические и биохимические реакции, в том числе и в организме человека. Будучи излучателем низкоэнергетических электронов (в среднем 5,7 кэВ при максимуме 18,6 кэВ), его внешнее воздействие не является актуальным, и основная доза формируется при попадании внутрь организма с водой, пищей и при вдыхании воздуха [6]. В отличие от внешнего проникающего излучения, такого как рентгеновское и гамма-излучение, внутреннее воздействие трития, в зависимости от химических и биохимических структур, в которые он включен, может привести к неоднородному (гетерогенному) распределению дозы в тканях и клетках.

Другими факторами, которые могут повлиять на радиотоксичность трития, являются трансмутационные и изотопные эффекты. Трансмутация это термин, используемый при образовании нового элемента в результате радиоактивного распада, который может отрицательно влиять на обменные процессы. Изотопные эффекты трития применимы к элементам с малой атомной массой, таким, как водород. Оба эффекта считаются незначительными факторами, влияющими на радиотоксичность трития [6].

При рассмотрении биологических и медицинских последствий внутреннего воздействия трития интерес представляют пять его основных химических форм:

- 1) оксид трития (далее – НТО);
- 2) органически связанный тритий (далее – ОСТ), включая насыщенные тритием биохимические субстраты (в частности, дезоксирибонуклеиновые кислоты (далее – ДНК), белки и т. д.);
- 3) заменяемый (или не стабильный) ОСТ;
- 4) нерастворимые соединения ОСТ;
- 5) газообразные органически связанные соединения.

ОСТ является общим термином, включающим соединения трития, где он имеет прямую ковалентную связь с углеродом и связь с углеродом через кислород, серу, азот и т. д. Особенностью этих связей, в первом случае является то, что пока сама биомолекула не трансформируется или не разрушится в результате ферментативной реакции, тритий остается инкорпорированным. Время нахождения этого соединения в клетке зависит от оборота биомолекул: быстро для молекул, участвующих в энергетическом цикле, и медленнее в случае структурированных молекул или макромолекул, типа молекул ДНК или молекул энергетических ресурсов. Такой тритий в ОСТ получил название не заменяемый или стабильный. Во втором случае тритий имеет такую же силу связи с молекулой углерода, как и в молекуле воды, поэтому легко заменяет протий из молекулы воды, образуя НТО. Тритий, присоединенный к атому кислорода, серы, азота или фосфора и легко заменяющийся водородом в воде, рядом авторов [7–9], не рассматривается в качестве ОСТ или специально квалифицируется как заменяемый ОСТ [10]. Этот тритий получил название заме-

няемый тритий или не стабильный, и он в растворах находится в равновесном состоянии с НТО и обладает его свойствами выведения.

Находясь в представленных выше формах тритий, попадая в организм человека, вызывает ряд нарушений, которые формируют поглощенную дозу. Исходя, из представленного выше многообразия форм трития и их оборота в организме человека не представляется возможным измерить поглощенную дозу напрямую и приходится обращаться к использованию биопроб (например, определение трития в моче) или к оценкам, основанным на данных мониторинга окружающей среды. При этом актуальной является процедура оценки дозы. Для того, чтобы оценить поглощенную дозу от трития в таких случаях используют биокинетические модели поведения трития в организме. Международная Комиссия по радиационной защите (МКРЗ) предложила три основных биокинетических модели по оценке дозы от соединений, содержащих тритий [6]:

1) наиболее распространенной является модель трития, которая описывает поступление трития в кровь в виде НТО после перорального либо ингаляционного поступления;

2) более приемлемой для населения считается модель трития, описывающая поступление трития в кровь в виде ОСТ, главным образом, после приема пищи, но также применяемая для ингаляции неопределенного органического материала, а также для перорального поступления или ингаляции некоторых конкретных тритиевых органических соединений;

3) для производства более актуальна общая модель МКРЗ, описывающая поступление трития через дыхательные пути человека, определяющая параметры абсорбции при ингаляции нерастворимых форм трития, используемых в промышленности, включая тритиды металлов.

Доза, рассчитанная по каждой из этих моделей, существенно отличается. Это связано как с различием в дозовых коэффициентах этих форм трития, так и временем выведения трития, содержащегося в этих формах из организма. В модели МКРЗ используется биологический полупериод выведения 10 дней для НТО и 40 дней для ОСТ [11, 12].

В настоящее время пока нет устоявшегося мнения о том, в каких формах тритий находится в организме человека. Наиболее часто встречаются публикации о том, что тритий в организме находится в виде НТО и только 3 % поступившего в организм трития в форме НТО трансформируется в ОСТ. Этой точки зрения и придерживается МКРЗ [6]. Однако в ряде публикаций [14, 15] отмечается, что если тритий поступает в организм в виде ОСТ, то доза может формироваться до 90 % за счет ОСТ. МКРЗ, обобщая имеющиеся данные посвященные трансформации ОСТ, поступающего в организм, придерживается мнения, что только 50 % этих соединений трансформируются в тканях, а 50 % выводятся в виде НТО [16, 17]. Обобщая эти данные, следует отметить, что роль ОСТ в формировании дозы еще недостаточно изучена, однако уже убедительно показано, что нельзя пренебрегать ОСТ, находящемся в организме человека, что в свою очередь требует на основе современных технологий разработки методов, позволяющих дифференцированно оценивать вклад в дозу различных соединений трития.

Для осуществления надзорных функций и предупреждения негативных воздействий на человека и окружающую среду введена система нормативов [18, 19]. Следует отметить, что их показатели для трития имеют достаточно большой разброс по странам, где осуществляются работы с возможным выходом этого радионуклида в воздух рабочей зоны производств и со сбросами и выбросами в окружающую среду. В частности, об этом позволяет судить норматив по тритию для питьевой воды. Так нормативы для питьевой воды для оксида трития колеблются от 100 до 7600 Бк/л [20]. Столь большая дисперсия свидетельствует, во-первых, о большой неопределенности в отношении отрицательного действия этого радионуклида на организм человека и, во-вторых, о разной нормативно-правовой базе в различных государствах.

Следует отметить, что нормирование трития, если речь идет о питьевой воде, в основном идет по его оксиду. В России этот показатель достаточно высокий (7600 Бк/л) [18] по сравнению с другими европейскими странами, а также рекомендациями международных организаций [21]. Особенность нормативно-законодательной базы такова, что в России в одной из не многих стран введен норматив по органическим соединениям трития. Правда он имеет отношение только к продуктам питания населения и не относится к персоналу. И вторая особенность, – в России запрещено законодательно разбавление ЖРО. Во многих странах с меньшими нормативными требованиями по содержанию трития таких требований нет.

Несмотря на различия в показателях трития и его соединений в окружающей среде в странах с развитой атомной энергетикой, в подземных водах, где идет депонирование этого радионуклида, его удельная активность примерно одинакова (табл. 1). Это говорит об одинаковой нагрузке на окружающую среду от радиационно-опасного объекта, независимо в какой стране он образовался и как организовано регулирование этого вопроса.

Таблица 1

Объемная активность трития и его соединений в объектах внешней среды

Объект	Вода питьевая (водопроводная), Бк/л	Вода из поверхностных источников, Бк/л	Вода подземная, Бк/л
Маяк [22–24]	до 200	20–2000	2000
Белоярская АЭС[22–]	до 25	20–600	–
РФЯЦ-ВНИИЭФ [25]	до 20	10–50	4200
ФЭИ [26]	до 130	10–400	1500
Braidwood АЭС (США) [27]	–	10–60	2150

2. Методическое обеспечение исследований по содержанию трития и его соединений в окружающей среде

Для проведения эффективного надзора за содержанием трития и его соединений в окружающей среде и изучения его поступления в организм человека актуальным является разработка технически простых, но высокоинформативных методов его определения с учетом форм, в которых он присутствует в окружающей среде и поступает в организм человека. В настоящее время разработана и используется на предприятиях ГК «Росатом» методика [28], позволяющая рассчитать дозу от содержания трития в организме персонала. Эта методика разработана на основе биокинетической модели поступления, накопления и выведения соединений трития из организма персонала при условии, что в организме тритий в основном содержится в форме НТО и только около 3 % в форме стабильного ОСТ [6].

Необходимость дифференцированного учета содержания трития в исследуемом объекте обусловлена существенным различием в биологической опасности форм, в которых он присутствует в окружающей среде. Это видно по существенному различию дозовых коэффициентов для форм трития, поступающих в организм человека. Величины дозовых коэффициентов, нормативно принятых в России, представлены в табл. 2

Таблица 2

Дозовые коэффициенты, нормативно принятые в России [19]

№ п/п	Формы трития	Величина дозового коэффициента Зв/Бк
Персонал		
1	Поступление с парами воды	$1,8 \cdot 10^{-11}$
2	Поступление в виде газа	$1,8 \cdot 10^{-15}$
3	Поступление газообразных органических соединений	$1,8 \cdot 10^{-13}$
Население (критичная группа населения: дети 1–2 года)		
4	Поступление с воздухом	$2,7 \cdot 10^{-10}$
5	Поступление с пищей (неорганические соединения)	$4,8 \cdot 10^{-11}$
6	Поступление с пищей (органические соединения)	$1,2 \cdot 10^{-10}$

Таким образом до настоящего времени все дозиметрические расчеты проводились в предположении, что тритий поступает в организм только в виде НТО, эффективный период полувыведения которого принят равным 10 суткам (для взрослого) [11]. Позднее в литературе [29] были опубликованы данные о том, что пренебрежение ОСТ при дозиметрических расчетах, т. е. проведение расчетов по моделям, основанным только на характеристиках обменного трития, может приводить к недооценке дозы. Это в первую очередь связано с тем, что стабильный ОСТ дольше удерживается в организме (у взрослых эффективный период полувыведения составляет 40 суток), а во вторых его ОБЭ существенно выше, чем у НТО [30].

В настоящее время очень немногие страны, в частности Франция [31], осуществляют измерение ОСТ. Получаемые научные данные [32] свидетельствуют о том, что его анализ должен стать частью регулярного мониторинга в ближайшие несколько лет. Так материалы [32] Института ядерной и радиационной безопасности Франции (IRSN) убедительно показывают, что мониторинг трития в окружающей среде и на протяжении всей пищевой корзины, с использованием признанных научным сообществом методов, должен быть увеличен.

Исходя из вышеизложенного очевидно, что необходимо концептуально изменить подход по оценке дозы от трития и его соединений, взяв за основу оценку эффективной дозы, в зависимости от форм трития, поступающих в организм. В связи с этим в настоящее время задачей номер один является разработка подходов по определению форм трития, поступающих в организм персонала из воздуха рабочей зоны и с водой. При этом следует отметить, что в воде тритий может быть представлен, как в виде оксида, так и в виде различных соединений в гумусе, бактериях, в аэрозолях, карбонатах и различные органические молекулы. В воздухе тритий может быть представлен в газообразном виде (T_2 , НТ), в виде газообразных органических соединений (метан и т. д.), а во влаге воздуха – в виде оксида, аэрозолей, бактерий, карбонатов, органических молекул.

Остаются дискуссионными вопросы, в каких соотношениях соединения трития находятся в окружающей среде, в каких соотношениях они поступают в организм персонала, и в каких соотношениях они присутствуют в организме. Ответы на эти вопросы позволят более точно установить дозу от трития и его соединений.

По каждому из представленных выше направлений нами проведен цикл работ по поиску наиболее приемлемых и достаточно простых в рутинном использовании методов разделения в образцах ОСТ и НТО. На первом этапе формирования подходов, по дифференцированной оценке, дозы от трития была поставлена задача оценить содержание трития в его формах, присутствующих в воде, где основной задачей стало разделить оксид трития от его органических соединений [26] При этом наиболее актуальным является выделение ОСТ, как наиболее опасной для живого организма группы соединений трития. Для этих целей в настоящее время имеется необходимая приборная база. Однако, что касается определения и измерения различных форм трития, то здесь возникают определенные методические трудности.

2.1. Разработка методики и исследования по содержанию соединений трития в воде

Для выделения органических соединений широкое распространение получила хромато-масс-спектрометрия, сочетающая такой способ разделения смесей, как хроматография с одним из наиболее информативных методов определения структуры органических соединений – масс-спектрометрией. Однако основным его недостатком является трудоемкость и невозможность выделить НТО из анализируемого образца.

Для разделения содержащихся в воде ОСТ и НТО использована последовательная, двухкаскадная фильтрация проб при использовании угольного фильтра типа «Барьер», задерживающего частицы размером более 1 мкм, и мембранного, обратноосмотического фильтра ТиМ 1.ООС, задерживающего наночастицы размером более 0,1 нм. Последовательная, каскадная фильтрация для выделения ОСТ в нашей лаборатории была использована впервые, хотя сам принцип применяется в медицине (разделение крови) и гидрогеологии (разделение органических веществ – метод Б. Дюпре) достаточно давно.

Для оценки химических соединений трития в воде было проведено ряд исследований, направленных на оценку доли содержания трития в виде органических соединений [26]. В качестве исходного субстрата была взята вода из контрольной скважины (скважина № 005) в районе хранилища РАО ГНЦ РФ – ФЭИ им. А. И. Лейпунского, а также из мест выхода подземных вод на поверхность – озеро Старица и из водопроводной воды взятой на территории предприятия. Пробы отбирали в бутылки объемом 1,5 л в соответствии с методикой отбора проб для гигиенических исследований.

Перед измерением в каждой пробе предварительно определяли концентрацию гидрокарбоната (HCO_3^-) по методике определения щелочности и массовой концентрации карбонатов и гидрокарбонатов с использованием титрования соляной кислотой с добавлением метилоранжа, а также концентрацию органических веществ $C_{\text{орг}}$ по методике окисления с использованием KMnO_4 . Полученные результаты представлены в табл. 3 [26].

Далее проводили последовательную, двухкаскадную фильтрацию проб. Сначала угольным фильтром «Барьер», потом обратноосмотическим фильтром ТиМ 1.ООС с промежуточным измерением активности проб. Из полученных результатов (таблица 3) видно, что в фильтрате после фильтра ТиМ 1.ООС нет ни гидрокарбонатов, ни органических веществ и таким образом, если будет определяться тритий, то это НТО.

Для измерения активности трития в пробах был использован низкофоновый спектрометрический альфа-бета радиометр Tri-Carb 3180TR/SL. Следует отметить, что модель Tri-Carb 3180TR/SL обеспечивает анализ сверхнизкоактивных образцов, активность которых близка к фону (за фон взято содержание соединений трития в поверхностных водоемах в районе поселка Архангельское Московской области). МДА по тритию ~1 Бк/л. Tri-Carb 3180TR/SL зарегистрирован в Государственном реестре средств измерений и допущен к применению в Российской Федерации.

Для разделения соединений трития в воде был использован следующий алгоритм:

- измерялась общая активность трития в исходной пробе (Бк/л);
- затем исследуемый образец воды пропускали через фильтр «Барьер» (с размерами пор 0,2 мкм), который позволяет задержать молекулы, составляющие гумус, крупные неорганические соединения, бактерии;
- активность полученного образца измеряли (Бк/л), этот образец содержит НТО и молекулы ОСТ с размером от 0,2 мкм до 0,1 нм, т. е. молекулы, которые являются такими органическими структурами, как спирты, эфиры,

предельные углеводороды и т. д., которые потенциально могут вступать в метаболические процессы в организме человека;

– полученный образец пропускали через фильтр типа ТиМ 1.ООС (размер пор составляет 0,1 нм). Если учесть, что размеры молекулы воды составляют 0,095 нм, то активность в фильтрате будет представлена только НТО;

– активность полученного фильтрата измеряли и получали активность, которая соответствовала НТО (Бк/л).

Таблица 3

Результаты химического анализа проб воды [26]

№ п/п	Проба	Концентрация гидрокарбонатов, мг/л	Концентрация органических веществ, мг/л
Вода из Скважины 005			
1	Исходная проба	910	16
	После фильтра «Барьер»	350	0
	После фильтра ТиМ 1.ООС	0	0
Вода из озера Старица			
2	Исходная проба	620	20
	После фильтра «Барьер»	150	0
	После фильтра ТиМ 1.ООС	0	0
Вода из водопровода, взятая на территории предприятия			
3	Исходная проба	610	26
	После фильтра «Барьер»	152	0
	После фильтра ТиМ 1.ООС	0	0

Из полученных результатов (табл. 4) видно, что тритий в образцах, взятых из скважины, в основном связан с крупными молекулами органики (гумус, бактерии и т. д.), а также с карбонатами. Причем видно, что содержание НТО во всех образцах примерно одинаково. Также примерно одинаково содержание трития в карбонатах.

Таким образом, в исследованных образцах воды из Скважины 005, озера Старица и из водопроводной сети на территории предприятия НТО составляло только 2 %, 6 % и 23 %, соответственно, от общей активности в образце. Из этих результатов видно, что в основном тритий содержится в гумусе, бактериях и др. Проведенные исследования были положены в основу методики каскадной фильтрации разделения НТО и ОСТ в водных образцах [33]. По этой методике было проведено ряд исследований, целью которых была оценка содержания соединений трития в пробах воды, отобранной в районе расположения АЭС (Калининской, далее – КЛНАЭС, Балаковской, далее – БЛАЭС) (табл. 5), а также ГНЦ РФ – ФЭИ и РФЯЦ-ВНИИЭФ. Из данных, представленных в табл. 5 видно, что в отобранных пробах воды, взятых в районе расположения отмеченных выше предприятий, основная доля из соединений трития приходится на его органические формы.

Таблица 4

Результаты измерений объемной активности трития в образцах проб воды [26]

№ п/п	Проба	Объемная активность трития, Бк/л	Погрешность, ±%
Вода из Скважины 005			
1	Исходная проба	1450	4,7
	После фильтра «Барьер»	78,0	5,6
	После фильтра ТИМ 1.ООС	28,1	6,4
Вода из озера Старица			
2	Исходная проба	398	6,2
	После фильтра «Барьер»	42,5	6,8
	После фильтра ТИМ 1.ООС	22,2	6,2
Вода из водопровода, взятая на территории предприятия			
3	Исходная проба	131	6,0
	После фильтра «Барьер»	75,7	7,8
	После фильтра ТИМ 1.ООС	29,4	12,2

Таблица 5

Содержание оксида трития в исследованных пробах воды, взятых в районе расположения предприятий ГК Росатом

№ п/п	Место отбора пробы	Этап измерения	Объемная активность трития в пробе, Бк/л
1	Скважина 005 (под хранилищем РАО (ФЭИ)) [26]	Исходная проба (НТО+ОСТ)	1450
		Проба после нанофильтра (НТО)	28
2	Скважина 144 (в 100 м от хранилища РАО (ФЭИ)) [26]	Исходная проба (НТО+ОСТ)	73
		Проба после нанофильтра (НТО)	26
3	Вода из озера Старица (в 150 м от хранилища РАО (ФЭИ)) [26]	Исходная проба (НТО+ОСТ)	398
		Проба после нанофильтра (НТО)	21
4	Поверхностная вода из р. Саровка	Исходная проба (НТО+ОСТ)	15
		Проба после нанофильтра (НТО)	4
5	Оз. Удомля, д. Ряд (КлнАЭС)	Исходная проба (НТО+ОСТ)	50
		Проба после нанофильтра (НТО)	3
6	Скважина 21 (КлнАЭС)	Исходная проба (НТО+ОСТ)	121
		Проба после нанофильтра (НТО)	11
7	Шламоотвал (брызгальный бассейн) (БлАЭС)	Исходная проба (НТО+ОСТ)	322
		Проба после нанофильтра (НТО)	42
8	Пруд-охладитель (БлАЭС)	Исходная проба (НТО+ОСТ)	100
		Проба после нанофильтра (НТО)	12
9	Пруд-охладитель (БлАЭС)	Исходная проба (НТО+ОСТ)	101
		Проба после нанофильтра (НТО)	5

Примечание. Пробы 4–9 отобраны описанным выше методом, как и пробы 1–3 для проведения радиационных гигиенических исследований.

2.2. Разработка методики и исследования по содержанию трития и его соединений в воздухе

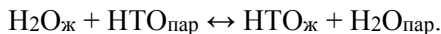
Как отмечено выше, ведущим фактором в формировании дозы от трития и его соединений у персонала, является их содержание в воздухе, где в отличие от воды тритий может присутствовать в газообразной форме, в виде НТО и ОСТ. При этом необходимо провести дифференцированную оценку содержания трития (в газообразной форме, НТО и ОСТ) в воздухе.

Для отбора проб воздуха в настоящее время широкое распространение получил метод барботирования, реализованный в расходомере-пробоотборнике трития и углерода-14 «TASC-НТ-НТО-С14» (производства Overhoff Technology Corporation, США, номер в Госреестре 56259-14) [34], позволяющий выделить тритий, находящийся в газообразном соединении (НТ, Т₂, СН₂Т, НТ и т. д.), от трития, находящегося в соединениях (НТО и ОСТ).

В соответствии с методикой, представленной разработчиком [34] тритий собирается с использованием двухстадийного процесса в каскад пробирок. Каждая стадия для сбора субстрата имеет по три пробирки. В первых трех пробирках собирается тритий, находящийся в соединениях (НТО и ОСТ), присутствующих в воздухе и которые способны переходить в воду. Далее воздух, очищенный от соединений, способных переходить в воду попадает на систему, где тритий, находящийся в газообразной форме, окисляется. При этом расщепляются и окисляются все газообразные соединения, содержащие тритий и этот окисленный тритий в виде НТО, собирается во втором наборе пробирок. Однако, как видно из представленной разработчиком методики [34], расходомер-пробоотборник трития и углерода-14 «TASC-НТ-НТО-С14» не позволяет осуществлять разделение НТО и ОСТ, что определило необходимость поиска методического решения, которое позволило бы осуществить эту процедуру. Таким решением стало использование, описанной выше методики двухкаскадной фильтрацией проб.

Измерения трития в газообразной форме и в форме его соединений позволяет установить содержание трития в газообразной форме и в форме НТО от ОСТ. На следующем этапе идет разделение НТО от ОСТ. С учетом того, что воздух содержит влагу, в которой растворены аэрозоли и различные молекулы, включая и органические, поэтому для установления содержания НТО и ОСТ в этом случае необходимо, извлечь эту взвесь (воду и частицы пыли) из воздуха.

Однако при отработке метода дифференцированной оценки содержания трития и его соединений в воздухе возникла временная проблема. Разработчик прибора «TASC-НТ-НТО-С14» гарантирует приемлемую погрешность измерений в том случае, если отбор пробы осуществляется в течение недели. Это не применимо при проведении санитарно-гигиенических исследований и при проведении контрольных измерений службой РБ предприятия. Приемлемым должно быть время не более 60–90 минут. Как показывают литературные данные такой промежуток времени возможен, если при отборе проб воздуха использовать технологию фазового изотопного обмена [35]. В основе технологии лежит равновесный процесс:



При этом фазовый изотопный обмен имеет константу равновесия $\alpha_{t=298\text{K}} = 1,09$. Использование платинового катализатора существенно повышает эту величину. При этом воздух рабочей зоны содержащий НТО и ОСТ, обменивается с протием воды и образует оксид трития, который собираются в первую виалу. Не взаимодействует с водой газообразный тритий и тритид метана, которые поступают в конвертор, где нагреваются и окисляются на Pt катализаторе и уже в виде оксида собирается во вторую виалу. По активности трития измеренной в этих виалах определяется раздельно содержание газообразного трития и его соединений (НТО и ОСТ). Этот способ анализа состава воздуха рабочей зоны, как отмечено выше перспективен, однако еще недостаточно изучен и требует дополнительных исследований по анализу собираемых форм трития.

Таким образом на основе пробоотборника «TASC-НТ-НТО-С14», а также метода конденсации была разработана методика дифференцированной оценки трития и его соединений в воздухе [36]. Используя разработанную методику, нами были проведены исследования воздуха рабочей зоны на предприятии, где по характеру работы в воздухе рабочей зоны присутствует тритий и его соединения [37].

Полученные данные свидетельствуют о том, что в воздухе рабочей зоны 74 % составляют соединения трития (НТО и ОСТ) и 26 % трития было в газообразном состоянии. При этом из соединений трития 34 % это НТО и 66 % это ОСТ. Другими словами – на долю трития в воздухе рабочей зоны находящегося в газообразном состоянии приходится 26 %, ОСТ – 49 % и НТО – 25 %. Таким образом, видно, что подавляющее влияние на формирование дозы от трития в производственных условиях, поступившего в организм с воздухом, оказывают ОСТ.

3. Оценка биологической опасности органически связанных форм трития

По данным опубликованным в докладе Генеральной Ассамблеи ООН 2016 года, посвященного биологическим эффектам трития [6] значение коэффициента ОБЭ для трития и его соединений, составляет от 1 до 3,5. При этом дозовый коэффициент для НТО, согласно этой публикации [6] при хроническом поступлении (в данном случае неважно при ингаляционном или пероральном) равен $1,8 \cdot 10^{-2}$ (мкЗв/год)/(Бк/л), а для ОСТ составляет величину от 4,2 до $7,6 \cdot 10^{-2}$ (мкЗв/год)/(Бк/л) в зависимости от типа органического соединения. Эти данные свидетельствуют об отсутствии до настоящего времени устоявшегося мнения о величине дозового коэффициента для ОСТ. Однако данные о ведущей роли ОСТ в формировании дозы, получаемой при дыхании на рабочих местах, воздухом, содержащим соединения трития, определяют

необходимость оценить коэффициент относительной биологической эффективности для ОСТ. С этой целью нами проведены сравнительные исследования повреждающего действия рентгеновского излучения, НТО и ОСТ на мезенхимальных стволовых клетках, где рентгеновское излучение взято в качестве эталонного. При этом основным параметром оценки было наличие двух нитевых разрывов (далее – ДР) в ДНК.

Следует отметить, что в последние десятилетия стремительно развиваются высокочувствительные методы косвенной оценки изменений количества ДР ДНК, основанные на иммуноцитохимическом анализе белков, участвующих в репарации ДР ДНК. Образующиеся во время репарации ДР комплексы представляют собой сложные динамические микроструктуры, состоящие из тысяч копий белков, которые визуализируются после иммуноцитохимического окрашивания в виде ярких точек, из-за чего и получили в литературе название фокусов белков репарации. Полагают, что один фокус соответствует сайту репарации одного ДР. Наибольшую популярность получил иммуноцитохимический анализ фокусов фосфорилированного корового гистона H2AX (γ H2AX). Фосфорилирование H2AX осуществляется киназами ATM, ATR и DNA-PK в ответ на образование ДР и свидетельствует о его распознавании. Показано, что при воздействии редкоизионизирующего излучения один фокус γ -H2AX соответствует одному ДР ДНК.

Целью наших исследований стало изучение количественных изменений маркера ДР ДНК – фокусов γ H2AX в культивируемых мезенхимальных стволовых клетках человека при воздействии ^3H -тимидина, оксида трития и в качестве сравнения рентгеновское излучение.

Облучение клеток рентгеновским излучением проводили на рентгеновской биологической установке РУБ РУСТ-М1 (Россия), оснащенной двумя рентгеновскими излучателями, при мощности дозы 40 мГр/мин, напряжении 100 кВ, токе 0,8 мА, фильтре 1,5 мм Al. После облучения клетки инкубировали в стандартных условиях CO_2 инкубатора в течение 0,5 ч [38].

Для инкубации клеток с соединениями трития к питательной среде добавляли стерильный раствор ^3H -тимидина или НТО с различной удельной активностью (конечная активность 50–800 МБк/л и инкубировали в стандартных условиях CO_2 -инкубатора в течение 24 ч по той же методике.

На первом этапе исследования нами была проведена оценка биологической опасности оксида трития в сравнении с рентгеновским излучением. Дозу, полученную клетками от оксида трития, рассчитывали исходя из того, что он, по литературным данным [6], распределяется в клетке равномерно. В случае гомогенно распределенного β -излучения, используя среднее значение энергии спектра, мощность дозы β -излучения в слое мягкой биологической ткани бесконечной толщины и протяженности \dot{D}_∞ рассчитывается по формуле [39]:

$$\dot{D}_\infty = 5,7 \cdot 10^{-7} q < E > \text{ Гр/ч,}$$

где q – удельная активность, Бк/мл, $< E >$ – средняя энергия бета-частиц, МэВ – $(5,68 \cdot 10^{-3})$.

При этом доза равна $D = \dot{D}_\infty t$ (Гр), где t – время облучения, ч.

Анализ полученных данных свидетельствует о том, что зависимость изменений количества образующихся фокусов γH2AX от дозы β -излучения оксида трития описывается уравнением $y = 2,52 + 6,70x$ ($R^2 = 0,97$), а от рентгеновского излучения $y = 2,64 + 0,06x$ ($R^2 = 0,96$).

Графически эти зависимости представлены на рис. 1, где y – количество фокусов γH2AX в клеточном ядре, а x – сформированная доза.

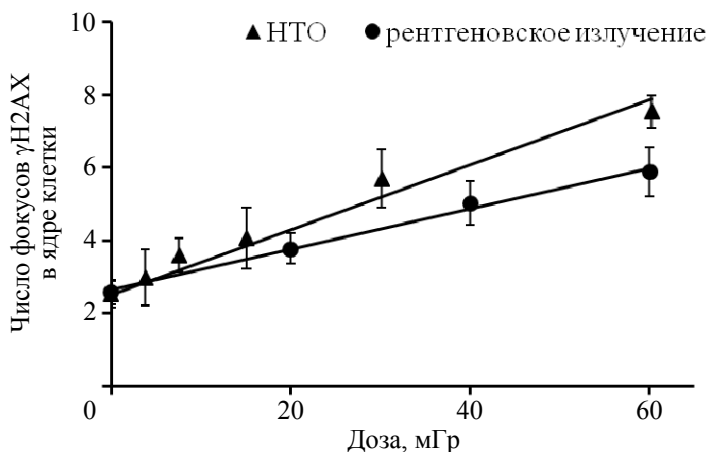


Рис. 1. Дозовые зависимости образования фокусов γH2AX в МСК человека при воздействии оксида трития (НТО) и рентгеновского излучения

При описании дозовых зависимостей линейными уравнениями ($y = a + bx$) угловой коэффициент b отражает прирост эффекта на единицу дозы. Сравнение угловых коэффициентов b двух дозовых зависимостей, полученных для разных типов воздействий, показывает насколько одно из них, более выражен по отношению к другому.

Полученные расчеты свидетельствуют о том, что в изученном дозовом диапазоне относительная биологическая эффективность (далее – ОБЭ) оксида трития может превышать рентгеновское излучение в 1,6 раза. Полученное значение хорошо согласуется с литературными данными [40, 41].

Зависимость изменений количества фокусов γH2AX от удельной радиоактивности ^3H -тимидина описывается линейным уравнением $y = 2,21 + 43,45x$ ($R^2 = 0,96$), где y – количество фокусов γH2AX в клеточном ядре, а x – удельная радиоактивность трития. Графически эти зависимости представлены на рис. 2.

В случае ^3H -тимидина принять допущение о гомогенном распределении в объеме клеточного ядра не представляется нам корректным, т. к. необходимо проводить расчеты доз с позиций микродозиметрии и его гетерогенного распределения в клеточном ядре. Полученные результаты свидетельствуют о том, что в диапазоне удельной радиоактивности 50–800 МБк/л количественный выход ДР ДНК при воздействии ^3H -тимидина \sim в 2–5 раза выше, чем при воздействии оксида трития. Таким образом, в очень грубом приближении доза при воздействии ^3H -тимидина для исследуемой культуры клеток

может быть выше в 8 раз по сравнению с рентгеновским излучением. Для определения более точного значения ОБЭ необходимо провести исследования с позиции микродозиметрии и гетерогенного распределения ^3H -тимидина в клеточном ядре.

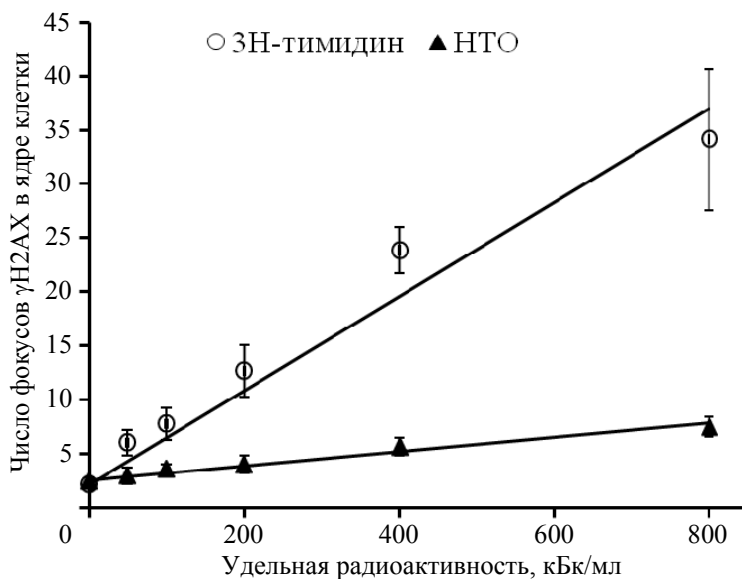


Рис. 2. Зависимость образования фокусов γH2AX в МСК человека от удельной радиоактивности ^3H -тимидина и оксида трития (НТО)

Выводы

1. Данные, полученные в ходе проведенных исследований, свидетельствуют о том, что органические формы трития вносят существенный вклад в общее поступление трития в организм персонала. Это определяет необходимость подходить к оценке дозы с учетом долей всех форм трития, которые могут быть на конкретном рабочем месте.

2. Комплексный подход, с использованием разработанных методик по определению трития в воздухе рабочей зоны и в воде, позволяет разделять тритий в газообразной форме, в форме оксида и в форме органических соединений. Это обеспечивает дифференцированный подход к оценке дозы от трития.

3. Полученные нами данные о содержании ОСТ в воздухе рабочей зоны определяют необходимость оценки вклада органических соединений трития в дозу.

4. Результаты, установленные на модели мезенхимальных стволовых клеток, свидетельствуют о том, что ОБЭ ОСТ существенно выше, чем у НТО.

Список литературы

1. Кочетков О. А., Монастырская С. Г., Кабанов Д. И. Проблемы нормирования техногенного трития (обзор) // Саратовский научно-медицинский журнал. 2013, т. 9, Т4, с. 815–819.
2. Jacobs, D. G. Sources of tritium and its behavior upon release to the environment. U.S. Atomic Energy Commission, Division of Technical Information, Tennessee, 1968.
3. Guétat P., Douche C. Hubinois JC (2008). Le tritium et l'environnement: sources, mesures et transferts. Radioprotection т.43: с. 547–569.
4. Yoon S., Ha W. H., Lee S. S. Tritium analysis of urine samples from the general Korean public. Appl Radiat Isot 81: 276–278 (2013).
5. Chebotina, M. Y., Nikolin O. A. The current tritium concentrations in human urine in the area of nuclear fuel cycle facilities. Dokl Biol Sci 447(6): 390–391 (2012).
6. UNSCEAR. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Report to the General Assembly. Annex C. Biological effects of selected internal emitters –Tritium. UNSCEAR 2016 Report. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. United Nations, New York, 2016.
7. Diabate, S. and S. Strack. Organically bound tritium. Health Phys 1993, 65(6): 698-712
8. Rochalska, M., Szot Z. The incorporation of organically-bound tritium of food into some organs of the rat. Int J Radiat Biol Relat Stud Phys Chem Med 1977, 31(4): 391–395.
9. Saito M., Ishida M. R., Travis C. C. Dose-modification factor for accumulated dose to cell nucleus due to protein-bound ^3H . Health Phys 1989, 56(6): 869–874.
10. Kim S. B., Baglan N., Davis P. A. Current understanding of organically bound tritium (OBT) in the environment. J Environ Radioact 2013, 126: 83–91.
11. ICRP. Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30 (Part 3). Annals of the ICRP 6 (2–3). International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, 1981.
12. ICRP. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 4. Inhalation dose coefficients. ICRP Publication 71. Annals of the ICRP 25 (3–4). International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, 1995.
13. 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 23 (3–4). International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, 1993.

14. Balonov M. I. Tritium dosimetry and standardization [Dozimetriya i normirovanie tritiya]. Ehnergoatomizdat 16: 152 (1983).
15. Balonov M. I., Muksinova K. N., Mushkacheva G. S. Tritium radiobiological effects in mammals: review of experiments of the last decade in Russia. Health Phys 1993 65(6): 713–726.
16. ICRP. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 1. ICRP Publication 56. Annals of the ICRP 20 (2). International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, 1990,
17. 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 23 (3–4). International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, 1993.
18. СП 2.6.1.2612-10 «Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности» (ОСПОРБ-99/2010).
19. СП 2.6.1.2523-09 «Нормы радиационной безопасности» (НРБ-99/2009) утверждены ГГСВ РФ 07.07.09 г.
20. Научный комитет ООН по действию атомной радиации. Пятьдесят девятая сессия Вена, 21–25 мая 2012 г. Биологическое действие некоторых внутреннего выбросов А. Тритий.
21. Standards and Guidelines for Tritium in Drinking Water. Published by the Canadian Nuclear Safety Commission CNSC Catalogue number INFO-0766, 2008.
22. Chebotina, M. Y., Nikolin O. Tritium water bodies in the area of PA Mayak. Radiation Safety Issues 1: 79–84 (2005). (Russian).
23. Kazachenok, N., Kostyuchenko V., Popova I. et al. Contemporary levels of radioactive contamination of environmental objects at EURT and other territories in the area of PA Mayak influence. Radiation Safety Issues 1: 33–48 (2014). (Russian).
24. Soyfer V. N., Goryachev V., Vakulovsky S. et al. Tritium Studies of Russia's Natural Waters. Geos, Russia, 2007. (Russian).
25. Катрич И. Ю. Мониторинг трития в природных водах СССР (России). Автореферат дисс. на соискание докт. геогр. наук. г. Обнинск, ГУ Институт глобального климата и экологии Росгидромета, 2009 г., с. 43.
26. Кабанов Д. И., Кочетков О. А., Фомин Г. В., Вайзер В. И., Веселов В. М. К обоснованию контроля органически связанного трития в окружающей среде ядерных установок // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Термоядерный синтез, 2012, вып. 1, с. 17–22.
27. АТОМИНФО.RU, опубликовано 30.06.2011.
28. Методические указания МУ 2.6.1.15-02 «Тритий и его соединения. Контроль величины индивидуальной эффективной дозы внутреннего облучения при поступлении в организм человека».

29. ICRP, 2016. Occupational Intakes of Radionuclides: Part 2. ICRP Publication 134. Ann. ICRP 45(3/4), 1–352.
30. Воробьева Н. Ю., Кочетков О. А., Пустовалова М. В. и др. Сравнительные исследования образования фокусов уН2АХ в мезенхимных стволовых клетках человека при воздействии 3Н-тимидина, оксида трития и рентгеновского излучения // Клеточные технологии в биологии и медицине, 2018, N 3, с. 205–208.
31. Pointurier F., Baglan N., Alanic G., Chiappini R. Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France. Journal of environmental radioactivity. 2003, vol. 68, p. 171–189.
32. Baglan N., Kim S. B., Cossonnet C., Croudace I. W., Fournier M., Galeriu D., Warwick P. E., Momoshima N., Ansoborlo E. Organically bound tritium (OBT) behaviour and analysis: outcomes of the seminar held in Balaruc-les-Bains in May 2012 // Radioprotection 2013, vol. 48, N 1, p. 127–144.
33. Методические указания по методам контроля. МУК 4.3. 044-2012. «Методика определения объемной активности органических и неорганических соединений трития в водных объектах методом жидкосцинтилляционной спектрометрии». Аттестована ФГУП «ВНИИФТРИ». Свидетельство об аттестации методики радиационного контроля № 40090.2В370 от 20 марта 2012 года.
34. Методика МТ 1.2.1.15.002.0238-2014 «Выполнение измерений при радиационном контроле трития и углерода-14 в помещениях АЭС с применением расходомера-пробоотборника TASC-НТ-НТО-С14 (МВК)». Аттестована ФГУП «ВНИИФТРИ». Свидетельство об аттестации № 40063.4Д199/01.00294-2010 от 14 мая 2014 года. Зарегистрирована в Федеральном информационном фонде по ОЕИ № Ф.1.40.2014.18213.
35. Перевезенцев А. Н., Розенкевич М. Б., Пак Ю. С., Марунич С. А., Букин А. Н. Фазовый изотопный обмен воды как метод детритизации газов // Теоретические основы химической технологии, 2013, т. 47, № 1, с. 54–61.
36. МУК 4.3.047 – 2017 «Методика определения концентрации органических и неорганических соединений трития в воздухе окружающей среды и производственных помещений».
37. Барчуков В. Г., Кочетков О. А., Фомин Г. В., Кабанов Д. И., Иванов Е. А. Распространение трития и его соединений воздушным путем при нормальных условиях эксплуатации Балаковской АЭС // АНРИ, 2016, № 1, с. 49–54.
38. Прилепский А. Ю., Дроздов А. С., Богатырев В. А., Староверов С. А. Методы работы с клеточными культурами и определение токсичности наноматериалов – СПб: Университет ИТМО, 2019. – 43 с.
39. Radiation Dosimetry (Hine G. J., Brownell G. L., eds.). 1956. Academic Press, New York.
40. Kozlowski R., Bouffler S. D., Haines J. W., Harrison J. D., Cox R. In utero haemopoietic sensitivity to alpha, beta or X-irradiation in CBA/H mice. International journal of radiation biology. 2001; 77(7): 805–815.

41. Little M. P., Lambert B. E. Systematic review of experimental studies on the relative biological effectiveness of tritium. Radiation and environmental biophysics. 2008; 47(1): 71–93.

A differentiated approach to the intake evaluation of tritium and its compounds in the human body

V. G. Barchukov

State Research Center – Burnasyan Federal Medical Biophysical
Center of Federal Medical Biological Agency (SRC-FMBC)
barchval@yandex.ru

This paper deals with main properties of tritium affecting its radiotoxicity. Three forms of tritium are described. Each form has its inherent ability to form an internal dose. This determines the need for a quantitative assessment of each of the forms in the air of the working area. For this purpose, the relevant methods have been developed and described in this paper. Based on these methods, the assessment of tritium forms in the air of the working area of nuclear power plants became possible. Also, the paper presents the results of experimental evaluation of relative biological effectiveness for tritium oxide and [3H]-thymidine. It was shown that tritium caused an order of magnitude more DNA disorders, compared with a similar x-ray dose.