Министерство образования и науки Российской федерации
Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение
высшего профессионального образования
“Южно-Уральский государственный университет”
(национальный исследовательский университет)

На правах рукописи

Тимофеев Юрий Сергеевич

ГАРМОНИЗАЦИЯ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭПР-ДОЗИМЕТРИИ ЗУБНОЙ ЭМАЛИ ЖИТЕЛЕЙ ПРИБРЕЖНЫХ РАЙОНОВ РЕКИ ТЕЧА

05.26.02 – безопасность в чрезвычайных ситуациях
(ядерный топливно-энергетический комплекс)

Диссертация
на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Научный руководитель –
кандидат биологических наук
Шишкина Елена Анатольевна,
научный консультант –
кандидат физ.-мат. наук, доцент
Заляпин Владимир Ильич

Челябинск - 2016

Оглавление

Введение..... 5

Глава 1. Литературный обзор 13

1.1. Радиационные аварии и радиационная безопасность 13

1.1.1. Крупные радиационные аварии..... 13

1.1.2. Нормы и контроль за радиационной безопасностью 18

1.2. Радиационная ситуация на реке Теча 20

1.3. Дозиметрическая система реки Теча 24

1.4. Ретроспективное восстановление уровня облучения населения в результате техногенных катастроф с помощью ЭПР дозиметрии 26

1.5. Описание ЭПР эксперимента..... 28

1.6. Показатели качества ЭПР методики и неопределенность измерений 32

1.7. Существующие подходы к оценке неопределенности ЭПР измерений 36

1.7.1. Описание аналитической модели оценки неопределенности.. 37

1.8. Дозы от фонового облучения для жителей Уральского региона 40

1.9. Заключение к литературному обзору 42

Глава 2. Материалы и методы 44

2.1. Описание калибровочного эксперимента..... 44

2.2. Исследование уровней фоновых доз на территории Южного Урала 45

2.3. Измерения доз у жителей прибрежных районов реки Теча 46

2.4. Анализ универсальности аналитической модели..... 47

2.4.1. Сравнение стохастических и аналитических оценок 49

Глава 3. Построение стохастической модели 51

3.1. Применимость аналитической модели неопределенности ЭПР измерений 51

3.1.1. Оценка необходимого количества моделируемых измерений ... 51

3.1.2. Сравнение стохастических и аналитических оценок 53

3.2. Универсальная стохастическая модель измерений 60

3.2.1. Анализ экспериментальных данных 61

3.2.2. Калибровка измерений 65

3.2.3. Оценка суммарной неопределенности измерения дозы 66

3.2.4. Описание компьютерной программы для стохастической имитации калибровочного эксперимента 69

3.2.5. Входные данные 70

3.2.6. Главное окно программы 70

3.2.7. Смоделированные амплитуды и дозы 71

3.2.8. Анализ смоделированных данных 74

3.3. Заключение к главе 79

Глава 4. Разделение фоновых и техногенных доз 81

4.1. Анализ экспериментальных данных фоновых измерений 81

4.2. Модель измерений 84

4.3. Оценивание параметров модели 84

4.4. Усреднение индивидуальных решений 85

4.5. Точность и надежность оценивания 86

4.6. Рассеяние параметров модели. Аналитический подход. 87

4.7. Бутстрап подход к оценке рассеяния параметров модели 88

4.8. Оценка параметров фонового распределения доз, систематические ошибки и пределы индивидуализации различных методик 89

4.9. Заключение к главе 92

Глава 5. Гармонизация измерений доз у жителей долины реки Теча 94

5.1. Гармонизация и сравнение с фоновым уровнем доз 94

5.3. Заключение к главе 98

Заключение 99

Литература 102

Приложение А. Свидетельство о регистрации программы 114

Введение

Актуальность темы

С конца 19го века, когда В.К. Рентгеном было открыто рентгеновское излучение и выявлено его негативное влияние на здоровье, стала актуальна проблема радиационной безопасности человека. С открытием ядерной реакции и повсеместным ее использованием в науке и технике эта проблема становилась всё актуальнее. Развитие ядерной энергетики сопровождалось множеством инцидентов, в результате которых окружающая среда подверглась радиоактивным загрязнениям. Уникальным в мировой практике по масштабам санитарных последствий стал техногенный инцидент с санкционированными и аварийными сбросами радиоактивных отходов в реку Теча производственным объединением «Маяк» в течение 1949-1956 гг.[1]. За этот период в экосистему реки Теча попало порядка 76 млн $м^3$ сточных радиоактивных вод, общей активностью по бета-излучению более 10^{17} Бк [2]. В регионе сложилась чрезвычайная ситуация, в результате которой около 30000 жителей прибрежных территорий подверглись хроническому облучению. Оценка опасности хронического облучения и минимизация его последствий являются одними из актуальных проблем обеспечения радиационной безопасности. Поэтому изучение последствий радиационного загрязнения, включая отдаленные эффекты, является одним из важнейших направлений современной радиационной эпидемиологии.

Одной из ключевых задач исследований последствий радиоактивного загрязнения р. Теча является ретроспективная дозиметрия. Для оценок доз внешнего облучения сегодня используются расчетные методы (Дозиметрическая Система Реки Теча – TRDS-2000 [3]). Валидация расчетных доз является важной задачей, которая может быть выполнена с помощью метода Электронного Парамагнитного Резонанса (ЭПР) на зубной эмали.

Электронно-парамагнитный резонанс в биодозиметрии – это физический метод, основанный на измерении стабильных радиационно-индуцированных

радикалов в твердых тканях (в основном в зубной эмали) человеческого тела [4]. Метод ЭПР-дозиметрии зубной эмали начал активно использоваться в конце восьмидесятых годов прошлого века и его широкое распространение на сегодняшний день подтверждает его эффективность, особенно в качестве инструмента в ретроспективных исследованиях [5-9].

Дозы, получаемые с помощью ЭПР дозиметрии зубной эмали, содержат в себе фоновую составляющую, дозу от внутреннего облучения и дозу от внешнего антропогенного облучения. Под фоновой составляющей понимаем здесь дозу, образованную в результате фонового излучения (космические лучи, естественные радионуклиды, а также незначительное количество антропогенных радионуклидов от глобальных выпадений) на местности, которая не подверглась изучаемому антропогенному воздействию. В данной работе исследования фоновых доз проводились для сельских жителей Уральского региона, которые не проживали на прибрежных территориях р. Теча. Для валидации TRDS необходимо оценить дозу внешнего облучения, поэтому из дозы, полученной с помощью ЭПР дозиметрии необходимо вычесть дозу от внутреннего облучения и фоновую составляющую. В рамках данной работы проведены исследования и дана оценка только для фоновых доз

В настоящей работе исследуются результаты, полученные с помощью 12-ти различных ЭПР методик для жителей прибрежных территорий р. Теча. Измерения проводились с 1992 по 2013 гг, в течении которых ЭПР методики в лабораториях претерпевали изменения, совершенствуясь или ухудшаясь, например, из-за старения спектрометра [10]. Существенные различия в этих методиках делают невозможным проведение совместного анализа полученных значений ЭПР доз без их предварительной гармонизации. Под гармонизацией в данной работе понимается оценка и коррекция систематических ошибок, соответствующих каждой из ЭПР методик.

Классический подход к оценке систематической погрешности, предполагающий сопоставление результатов измерений со стандартным

образцом оказался неприменим для ЭПР дозиметрии зубной эмали, поскольку эмаль зубов – это биологический образец, для которого не существует референтного (необлученного) образца и, который мог бы использоваться в качестве эталона. Для оценки систематических ошибок ЭПР дозиметрии потребовалось разработать оригинальный метод, предполагающий использование в качестве заменителя стандарта - дозу в эмали, накопленную от радиационного фона. Сопоставление ЭПР измерений фоновых доз, полученных в результате измерения необлученных образцов, с “истинным” значением фона позволяет оценить систематическое смещение. Разработанный метод опирается на информацию о показателях качества ЭПР измерений для разных методик, таких как: критическая доза, предел детектирования и неопределенность измерения [11]. Поскольку до настоящего времени не существовало общепринятой единой методики оценки названных показателей качества измерений, то потребовалось разработать единый алгоритм, применимый к различным ЭПР методикам.

Цели и задачи диссертационной работы

Целью данной работы является гармонизация измерений доз, полученных в ЭПР исследованиях эмали зубов у жителей прибрежной зоны реки Теча.

Для достижения данной цели необходимо решить следующие задачи:

1. Разработать единый алгоритм для определения показателей качества методик ЭПР дозиметрии: критическая доза, предел детектирования, неопределенность оценки дозы.
2. Реконструировать распределение фоновых доз в эмали зубов из экспериментальных данных, полученных в результате измерений необлученных образцов и оценить систематические погрешности ЭПР методик.
3. Гармонизировать данные измерений доз у жителей прибрежных районов реки Теча с помощью найденных систематических погрешностей.

Научная новизна

Разработан алгоритм для оценки показателей качества ЭПР методик при измерении доз в эмали зубов человека. Впервые применен статистический метод моментов для реконструкции фоновых доз из экспериментальных данных ЭПР измерений эмали зубов, близких к пределу детектирования. Впервые реконструировано распределение фоновых доз для сельских жителей Уральского региона. Впервые был проведен анализ гармонизированных данных ЭПР измерений сельских жителей прибрежных районов реки Теча.

Практическая значимость

Диссертационная работа носит прикладной характер. В диссертации предложен единый алгоритм для оценки показателей качества методики ЭПР дозиметрии, который был реализован в компьютерной программе (свидетельство о государственной регистрации №2014610805). Программа позволяет любой лаборатории оценивать показатели качества для своей ЭПР методики и отслеживать их изменение в процессе многолетней эксплуатации оборудования [10]. Использование разработанной программы в разных лабораториях позволит сравнивать показатели качества, в используемых ими методиках. Найденные с помощью программы оценки были использованы для гармонизации дозиметрических данных, полученных разными ЭПР лабораториями в исследованиях на реке Теча.

Оценены параметры логнормального распределения фоновых доз, что позволило получить значение дозового порога (предела индивидуализации), ниже которого результаты измерений нельзя достоверно отличить от фоновых уровней. ЭПР дозы ниже предела индивидуализации принципиально нельзя использовать для определения индивидуальных техногенных доз.

Уточнены оценки систематических ошибок для 12ти различных методик ЭПР дозиметрии на зубной эмали. Полученные несмещенные оценки доз в эмали зубов жителей прибрежных районов реки Теча, которые будут использованы для валидации доз внешнего облучения, рассчитанных на основе дозиметрической системы реки Теча.

Методология и методы исследования

Для построения стохастической модели для имитации реального ЭПР эксперимента были исследованы данные межлабораторного эксперимента с помощью статистического анализа для выявления зависимостей между различными физическими величинами.

Задача по выделению фонового распределения доз из измерений необлученных образцов была решена с помощью статистического метода моментов при экспертном допущении о форме этого распределения и модели измерений. Система метода моментов для определения параметров фонового распределения была решена численно с использованием математического пакета «Mathematica».

Построенный единый алгоритм по определению показателей качества методики ЭПР дозиметрии был реализован с помощью метода Монте-Карло в компьютерной программе, разработанной в среде C++ Builder 6. Для генерации псевдослучайных чисел, необходимых для получения реализаций различных распределений, использовался алгоритм из встроенной в среду разработки библиотеки stdlib.h.

На защиту выносятся следующие положения:

1. Единый алгоритм для определения показателей качества методик ЭПР дозиметрии, включая критическую дозу, предел детектирования, неопределенность оценки дозы. Для исследуемых ЭПР методик критические значения доз (DC) находят в диапазоне 48-233 мГр, пределы детектирования (LDD) – от 94 мГр до 635 мГр.
2. Реконструировано распределение фоновых доз из измерений, полученных в результате ЭПР эксперимента на необлученных образцах. При экспертном допущении о логнормальности распределения ($LogN[m, s]$) фоновых доз, оценены параметры этого распределения для сельских жителей Южного Урала: $m = 3.9$ и $s = 0.7$. Учитывая средний возраст донора, получена средняя фоновая доза – 1 мГр/год.

3. Создана программа ЭВМ по стохастической имитации ЭПР эксперимента, реализующая предложенный универсальный метод и позволяющая оценить показатели качества ЭПР методики и пределы индивидуализации (свидетельство о государственной регистрации №2014610805).
4. Гармонизированы данные доз в эмали зубов у жителей прибрежных районов реки Теча. Для сел, расположенных дальше 54 км по течению от места сброса отходов, среднее превышение фонового уровня облучения для сельских жителей Уральского региона составляет 65 мГр и попадает в 95% доверительный интервал для распределения фоновых доз.

Апробация работы

Основные результаты работы докладывались на XVIII-ой конференции «Математика. Компьютер. Образование» (2009, 2011), международной конференции «Late Health Effects of Ionizing Radiation: Bridging the Experimental and Epidemiologic Divide» (2009), международной школе-конференции «Продвинутые методы компьютерного моделирования» для молодых ученых (2009), 41ой Всероссийской Молодежной школе-конференции «Проблемы теоретической и прикладной математики» (2010), IV международной конференции «Хроническое радиационное воздействие: эффекты малых доз» (2010), международной конференции EPRBiodose (2010, 2013), 56ой и 58ой ежегодной конференции «Health Physics Society» (2011, 2013), международной конференции «Experience in minimizing consequences of the 1957 accident» (2012).

Компьютерная программа, реализующая предложенный универсальный алгоритм по оценке показателей качества ЭПР метода, зарегистрирована в реестре программ для ЭВМ в Федеральной службе по интеллектуальной собственности. Программа была апробирована на данных межлабораторного эксперимента и внедрена исследовательские процессы, проводимые в

Уральском научно-практическом центре радиационной медицины (ФГУБН УНПЦ РМ ФМБА России).

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения, списка литературы и приложения. Нумерация глав сквозная. Главы разбиты на параграфы, некоторые из которых разбиты на подпараграфы и имеют тройную нумерацию – первая цифра означает номер главы, вторая – номер параграфа в главе, третья – номер подпараграфа. Нумерация формул, рисунков, таблиц – сквозная. Объем работы 114 страниц, библиография содержит 100 наименований.

Первая глава состоит из девяти параграфов, в которых описываются проблемы радиационной безопасности и необходимость защиты человека от ионизирующего излучения. Приведено описание сложной радиационной обстановки в долине реки Теча, которая образовалась в результате деятельности ПО «Маяк». Обосновывается необходимость ретроспективных ЭПР исследований на эмали зубов человека для валидации Дозиметрической системы реки Теча (TRDS-2000). Отмечена важность определения показателей качества различных ЭПР методик, а также оценка неопределенности ЭПР измерений. Описаны имеющиеся подходы к оценке неопределенности и разработанная другими авторами аналитическая модель.

Вторая глава посвящена описанию данных межлабораторного эксперимента по интеркалибровке, использовавшихся для построения алгоритма оценки показателей качества ЭПР методик. Дано описание экспериментальных данных, полученных в ходе изучения уровней фоновых доз для жителей Южного Урала, а также в исследованиях, проведенных на реке Теча. Определены условия, с помощью которых определялась возможность применения аналитической модели оценки неопределенности к различным ЭПР методикам.

В третьей главе в первом параграфе проведено исследование применимости аналитической модели к оценке неопределенности различных

ЭПР методик. Второй параграф посвящен построению стохастической модели для определения показателей качества ЭПР методик и неопределенности измерений доз, которая была реализована в компьютерной программе. Дано описание интерфейса и функциональных возможностей разработанной программы.

Четвертая глава состоит из девяти параграфов, в которых описан метод для определения распределения фоновых доз из экспериментальных данных. В первых двух параграфах проведен анализ экспериментальных данных и описана модель измерений. В следующих параграфах, основываясь на модель измерений, с помощью математического метода моментов определены параметры распределения фоновых доз, а также их точность и надежность.

В пятой главе, используя найденные для различных ЭПР методик систематические ошибки измерений, проведена гармонизация полученных в результате исследований на реке Теча экспериментальных данных. Гармонизированные данные были проанализированы и сравнены со средним фоном для жителей Уральского региона.

Глава 1. Литературный обзор

1.1. Радиационные аварии и радиационная безопасность

Открытие радиоактивного распада послужило мощным толчком к развитию науки и техники. Новые знания нашли применение не только в новых видах вооружения, но и в медицине, атомной энергетике, космических технологиях и т.д. Бурное развитие атомных технологий опережало научное представление об их безопасности для окружающей среды и человека. В процессе радиоактивного распада возникает ионизирующее излучение, которое изменяет физико-химические свойства веществ и, поэтому, оказывает на живой организм поражающее действие. Различают следующие основные типы радиоактивных излучений, отличающихся ионизирующей и проникающей способностью: альфа, бета, нейтронные, рентгеновские и гамма-излучения [12].

Поражение человека радиоактивными излучениями возможно в результате как внешнего, так и внутреннего облучения. Внешнее облучение создается радиоактивными веществами, находящимися вне организма, а внутреннее - попавшими внутрь с воздухом, водой и пищей. Очевидно, что при внешнем облучении наиболее опасны излучения, имеющие высокую проникающую способность, а при внутреннем — ионизирующую. Считается, что внутреннее облучение более опасно, чем внешнее, от которого нас защищают стены помещений, одежда, кожные покровы, специальные средства защиты и др. Радиоактивные вещества, попадая внутрь организма, встраиваются в органы и кости на клеточном уровне, оказывая разрушающее действие в течение длительного времени.

1.1.1. Крупные радиационные аварии

Практическое изучение последствий радиоактивного облучения происходило, в том числе, после множества радиационных аварий, самые крупные из которых приведены ниже [13].

1 сентября 1944 года в США, штат Теннеси, в Ок-Риджской национальной лаборатории при попытке прочистить трубу в лабораторном устройстве по обогащению урана произошел взрыв гексафторида урана, что привело к образованию опасного вещества – гидрофтористой кислоты. Пять человек, находившихся в это время в лаборатории, пострадали от кислотных ожогов и вдыхания смеси радиоактивных и кислотных паров. Двое из них погибли, а остальные получили серьезные травмы.

В СССР первая тяжелая радиационная авария произошла 19 июня 1948 года, на следующий же день после выхода атомного реактора по наработке оружейного плутония (объект «А» комбината «Маяк» в Челябинской области) на проектную мощность. В результате недостаточного охлаждения нескольких урановых блоков произошло их локальное сплавление с окружающим графитом. В ходе ликвидации аварии облучению подвергся весь мужской персонал реактора, а также солдаты строительных батальонов, привлеченные к ликвидации аварии.

3 марта 1949 года в Челябинской области в результате массового сброса комбинатом «Маяк» в реку Теча высокоактивных жидких радиоактивных отходов облучению подверглись около 124 тысяч человек в 41 населенном пункте. Наибольшую дозу облучения получили 28 100 человек, проживавших в прибрежных населенных пунктах по реке Теча (средняя индивидуальная доза – 210 мЗв). У части из них были зарегистрированы случаи хронической лучевой болезни.

12 декабря 1952 года в Канаде произошла первая в мире серьезная авария на атомной электростанции. Техническая ошибка персонала АЭС Чолк-Ривер (штат Онтарио) привела к перегреву и частичному расплавлению активной зоны. Тысячи кюри продуктов деления попали во внешнюю среду, а около 3800 кубических метров радиоактивно загрязненной воды было сброшено прямо на землю, в мелкие траншеи неподалеку от реки Оттавы.

29 ноября 1955 года «человеческий фактор» привел к аварии американский экспериментальный реактор EBR-1 (штат Айдахо, США). В процессе эксперимента с плутонием, в результате неверных действий оператора, реактор саморазрушился, выгорело 40% его активной зоны.

29 сентября 1957 года произошла авария, получившая название «Кыштымская». В хранилище радиоактивных отходов ПО «Маяк» в Челябинской области взорвалась емкость, содержавшая 20 миллионов кюри радиоактивности. Специалисты оценили мощность взрыва в 70-100 тонн в тротиловом эквиваленте. Радиоактивное облако от взрыва прошло над Челябинской, Свердловской и Тюменской областями, образовав так называемый Восточно-Уральский радиоактивный след площадью свыше 20 тысяч кв. км. По оценкам специалистов в первые часы после взрыва до эвакуации с промплощадки комбината подверглись разовому облучению до 100 рентген более пяти тысяч человек. В ликвидации последствий аварии в период с 1957 по 1959 год участвовали от 25 тысяч до 30 тысяч военнослужащих. В советское время катастрофа была засекречена.

10 октября 1957 года в Великобритании в Виндскейле произошла крупная авария на одном из двух реакторов по наработке оружейного плутония. Вследствие ошибки, допущенной при эксплуатации, температура топлива в реакторе резко возросла, и в активной зоне возник пожар, продолжавшийся в течение 4 суток. Получили повреждения 150 технологических каналов, что повлекло за собой выброс радионуклидов. Всего сгорело около 11 тонн урана. Радиоактивные осадки загрязнили обширные области Англии и Ирландии; радиоактивное облако достигло Бельгии, Дании, Германии, Норвегии.

В апреле 1967 года произошел очередной радиационный инцидент в ПО «Маяк». Озеро Карачай, которое ПО «Маяк» использовало для сброса жидких радиоактивных отходов, сильно обмелело; при этом оголилось 2-3 гектара прибрежной полосы и 2-3 гектара дна озера. В результате ветрового подъема донных отложений с оголившихся участков дна водоема была вынесена

радиоактивная пыль около 600 Ku активности. Была загрязнена территория в 1 тысячу 800 квадратных километров, на которой проживало около 40 тысяч человек.

В 1969 году произошла авария подземного ядерного реактора в Люценсе (Швейцария). Пещеру, где находился реактор, зараженную радиоактивными выбросами, пришлось навсегда замуровать. В том же году произошла авария во Франции: на АЭС «Святой Лаврентий» взорвался запущенный реактор мощностью 500 мВт. Оказалось, что во время ночной смены оператор по невнимательности неправильно загрузил топливный канал. В результате часть элементов перегрелась и расплавилась, вытекло около 50 кг жидкого ядерного топлива.

18 января 1970 года произошла радиационная катастрофа на заводе «Красное Сормово» (Нижний Новгород). При строительстве атомной подводной лодки К 320 произошел неразрешенный запуск реактора, который отработал на запредельной мощности около 15 секунд. При этом произошло радиоактивное заражение зоны цеха, в котором строилось судно. В цехе находилось около 1000 рабочих. Радиоактивного заражения местности удалось избежать из-за закрытости цеха. В тот день многие ушли домой, не получив необходимой дезактивационной обработки и медицинской помощи. Шестерых пострадавших доставили в московскую больницу, трое из них скончались через неделю с диагнозом острая лучевая болезнь, с остальных взяли подписку о неразглашении на 25 лет. Основные работы по ликвидации аварии продолжались до 24 апреля 1970 года. В них приняло участие более тысячи человек. К январю 2005 года в живых из них осталось 380 человек.

Семичасовой пожар 22 марта 1975 года на реакторе АЭС «Браунс Ферри» в США (штат Алабама) обошелся в 10 млн долларов. Все случилось после того, как рабочий с зажженной свечой в руке полез заделать протечку воздуха в бетонной стене. Огонь был подхвачен сквозняком и распространился через кабельный канал. АЭС на год была выведена из строя.

Самым серьезным инцидентом в атомной энергетике США стала авария на АЭС Тримайл-Айленд в штате Пенсильвания, произошедшая 28 марта 1979 года. В результате серии сбоев в работе оборудования и грубых ошибок операторов на втором энергоблоке АЭС произошло расплавление 53% активной зоны реактора. Произошел выброс в атмосферу инертных радиоактивных газов – ксенона и йода Кроме того, в реку Сукуахана было сброшено 185 кубических метров слаборадиоактивной воды. Из района, подвергшегося радиационному воздействию, было эвакуировано 200 тысяч человек.

В ночь с 25 на 26 апреля 1986 года на четвертом блоке Чернобыльской АЭС (Украина) произошла крупнейшая ядерная авария в мире, с частичным разрушением активной зоны реактора и выходом осколков деления за пределы зоны. По свидетельству специалистов, авария произошла из-за попытки проделать эксперимент по снятию дополнительной энергии во время работы основного атомного реактора. В атмосферу было выброшено 190 тонн радиоактивных веществ. 8 из 140 тонн радиоактивного топлива реактора оказались в воздухе. Другие опасные вещества продолжали покидать реактор в результате пожара, длившегося почти две недели. Люди в Чернобыле подверглись облучению в 90 раз большему, чем при падении бомбы на Хиросиму. В результате аварии произошло радиоактивное заражение в радиусе 30 км. Загрязнена территория площадью 160 тысяч квадратных километров в северной части Украины, в республике Беларусь и на западе России, где радиационному загрязнению подверглись 19 российских регионов с территорией почти 60 тысяч квадратных километров и с населением 2,6 миллиона человек.

30 сентября 1999 года произошла крупнейшая авария в истории атомной энергетики Японии. На заводе по изготовлению топлива для АЭС в научном городке Токаймура (префектура Ибараки) из-за ошибки персонала началась неуправляемая цепная реакция, которая продолжалась в течение 17 часов.

Облучению подверглись 439 человек, 119 из них получили дозу, превышающую ежегодно допустимый уровень. Трое рабочих получили критические дозы облучения. Двое из них скончались.

9 августа 2004 года произошла авария на АЭС «Михама», расположенной в 320 километрах к западу от Токио на о.Хонсю. В турбине третьего реактора произошел мощный выброс пара температурой около 200 градусов по Цельсию. Находившиеся рядом сотрудники АЭС получили серьезные ожоги. В момент аварии в здании, где расположен третий реактор, находились около 200 человек. Утечки радиоактивных материалов в результате аварии не обнаружено. Четыре человека погибли, 18 – серьезно пострадали. Авария стала самой серьезной по числу жертв на АЭС в Японии.

11 марта 2011 года в Японии произошло самое мощное за всю историю страны землетрясение. В результате на АЭС Онагава была разрушена турбина, возник пожар, который удалось быстро ликвидировать. На АЭС Фукусима-1 ситуация сложилась очень серьезная - в результате отключения системы охлаждения расплавилось ядерное топливо в реакторе блока №1, снаружи блока была зафиксирована утечка радиации, в 10-километровой зоне вокруг АЭС проведена эвакуация.

1.1.2. Нормы и контроль за радиационной безопасностью

Необходимость защиты человека от ионизирующего излучения была очевидна практически сразу после его открытия. Изменения в клетках человека индуцированные радиационным излучением могут инициировать развитие раковых заболеваний. Генетические нарушения, образующиеся под воздействием внешнего облучения, могут вызывать наследственные заболевания в последующих поколениях [14]. Поэтому была образована Международная комиссия по радиологической защите (МКРЗ), которая в 1934 г. приняла значение 0,2 Р/д в качестве предельно-допустимой

экспозиционной дозы [15]. Следовательно, было неявно признано, что эффекты воздействия излучений на человека имеют порог.

Принято считать, что тяжесть последствий от ионизирующего облучения напрямую зависит от величины полученной дозы. Также известно, что облучение человека малыми дозами, особенно в течение длительного периода, порой может быть опаснее больших доз [16-20]. Сигнальные системы не улавливают радиационного воздействия малыми дозами и не запускают репарационные процессы.

В различные периоды времени в нашей стране действовал целый ряд стандартов радиационной безопасности. Нормы радиационной безопасности (НРБ) представляют собой основополагающий документ в системе государственного регулирования, в котором регламентируются основные дозовые пределы, допустимые уровни воздействия ионизирующего излучения и другие требования по ограничению облучения человека. Методология нормирования уровней облучения, разработанная МКРЗ, практически без изменений использована в «Нормах радиационной безопасности (НРБ-99, НРБ-99/2009)», введенных в действие 1 сентября 2009 г., в основу которых положены принципы ALARA (As Low As Reasonably Achievable − настолько низко, насколько это практически достижимо):

1) непревышение допустимых пределов индивидуальной дозы от всех источников излучения (принцип нормирования);

2) запрещение всех видов деятельности по использованию источников излучения, при которых полученная для человека и общества польза не превышает риск возможного вреда, причиненного дополнительным облучением (принцип обоснования);

3) поддержание на возможно низком и реально достижимом уровне, с учетом экономических и социальных факторов, индивидуальных доз облучения и числа облучаемых лиц при использовании любого источника излучения (принцип оптимизации).

В соответствии с законом Российской Федерации «О радиационной безопасности населения» радиационная безопасность – это состояние защищенности настоящего и будущего поколений людей от вредного для их здоровья воздействия ионизирующих излучений. Обеспечение радиационной безопасности базируется на трех основных принципах ALARA, приведенных выше.

В настоящее время в России одновременно действуют более 10 основных законов: «Об использовании атомной энергии», «О радиационной безопасности населения», «О финансировании особо радиационно-опасных и ядерно-опасных производств и объектов», «Об административной ответственности организаций за нарушение законодательства в области использования атомной энергии», «О санитарно-эпидемиологическом благополучии населения», «Об охране окружающей среды», «О защите населения и территорий от чрезвычайных ситуаций природного и техногенного характера», «О социальной защите граждан, подвергшихся воздействию радиации вследствие катастрофы на Чернобыльской АЭС», «О техническом регулировании», «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации».

Наблюдением за исполнением норм радиационной безопасности в Российской Федерации занимается Федеральная служба по экологическому, технологическому и атомному надзору («Ростехнадзор»), которая была образована из Федеральной службы по технологическому надзору и Федеральной службы по атомному надзору Указом Президента Российской Федерации от 20 мая 2004 г.

1.2. Радиационная ситуация на реке Теча

В предыдущей главе были перечислены крупные радиационные аварии, произошедшие в мире с 1944 г. На долю Уральского региона выпало 3 из них,

каждая из которых была связана с деятельностью производственного объединения «Маяк»:

1) плановые и аварийные сбросы жидких радиоактивных отходов в реку Теча в 1949-1956 г.;
2) взрыв в хранилище радиоактивных отходов в 1957 г., в результате которого образовался Восточно-Уральский радиоактивный след (ВУРС);
3) обмеление в 1967 г. озера Карачай, использовавшегося для сброса радиоактивных отходов (Карачаевский след).

В текущей работе рассматривается ситуация на реке Теча, которая образовалась в результате плановых и аварийных сбросов жидких радиоактивных отходов в 1949-1956 г.

Производственное объединение «Маяк» было создано на Южном Урале в конце сороковых годов для получения оружейного плутония и переработки делящихся материалов. Процесс наращивания производства плутония на ПО «Маяк» (в течение 1948-1955 гг. в эксплуатацию было введено 6 реакторов), а также отсутствие надежных технологий переработки и хранения радиоактивных отходов привели к тому, что с 1949 г. часть сточных вод, содержащих радиоактивные вещества, удалялась в реку Теча. Причем в период с марта 1950 по октябрь 1951 гг. сбросы были практически бесконтрольными и в большей части определили загрязнение речной системы (~98% всей сброшенной активности). Количество активности в этот период достигало 100000 Ки в сутки. В течение 1949-1956 гг. в экосистему реки Теча попало порядка 76 млн м^3 сточных радиоактивных вод [2]. Это привело к сильному радиоактивному загрязнению речной системы и продолжительному облучению около 30000 жителей прибрежных населенных пунктов [1].

Исследования показали, что население прибрежных сел подверглось комбинированному внешнему и внутреннему облучению [21, 22, 23]. Основными источниками внешнего γ-облучения являлись: донные отложения и

пойменные почвы, а также некоторые участки территории населенных пунктов, загрязненные в результате хозяйственной деятельности (полив огородов, перенос радионуклидов с экскрементами сельскохозяйственных животных и т.п.). Основными источниками внутреннего облучения являлись радионуклиды, поступившие в организм с речной водой и продуктами местного производства (молоко, рыба, овощи с поливных огородов и т.п.). Уже в первые годы исследований радиационной ситуации на реке Теча стало ясно, что основным дозообразующим радионуклидом является ^{90}Sr, который накапливается и длительное время удерживался в костной ткани. Поэтому с начала пятидесятых годов огромное внимание уделялось измерениям содержания этого радионуклида в организме и отдельных органах жителей сел по реке Теча. Общий радионуклидный состав сбросных вод был определен по материалам отчетов ЦНИЛ ПО «Маяк» за 1951-56 гг.: ^{90}Sr – 11.6%, ^{89}Sr – 8.8%, ^{137}Cr – 12.2%, ^{95}Zr и ^{95}Nb – 13.6%, $^{103,106}Ru$ – 25.9%, РЗЭ – 26.8% [1].

Инцидент с радиоактивным загрязнением реки Теча является беспрецедентным в мировой практике, как по санитарным последствиям, так и по масштабам проведенных защитных мероприятий. На радиационную защиту населения было израсходовано несколько миллионов рублей в ценах 1970 г. [1]. Учитывая, что в то время еще не было достаточных знаний и опыта, проведение защитных мероприятий представляло большие трудности. Весь комплекс мероприятий можно разбить на три основные группы. К первой группе относятся технические мероприятия, направленные на снижение радиоактивной загрязненности водоема. Вторая группа объединяет технические, организационные и другие меры, предусматривающие исключение или уменьшение радиационного воздействия загрязненного водоема на жителей прибрежных районов. Третья группа охватывает мероприятия по контролю за радиационной обстановкой в прибрежном районе и состоянием здоровья местного населения.

Наиболее радикальным мероприятием по уменьшению дальнейшего загрязнения реки было прекращение спуска высокоактивных стоков, что позволило уже к концу 1951 г. значительно снизить удельную активность речной воды. Также в 1956 г. было завершено строительство плотины искусственного водоема №10 и обводных каналов в верховьях реки Теча, что позволило значительно сократить поступление радионуклидов в открытую гидрографическую сеть. Позднее, в 1987 г. ПО «Маяк» была прекращена наработка оружейного плутония и его переработка [24].

Общая радиационная ситуация в Челябинской области хорошо характеризуется письмом академика О.М. Нефедова Президенту России от 2 июля 1991 года [24]. Приводим выдержку из этого письма:

«В 1949-1967 годах на ПО «Маяк» имели место три чрезвычайных радиационные ситуации, которые привели к радиоактивному загрязнению 23 тысяч квадратных километров территории, гидрографической системы региона и повышенному облучению 437 тысяч человек, при выборочном обследовании которых у 935 из них была диагностирована хроническая лучевая болезнь. Среди персонала комбината лучевая болезнь диагностирована в 1500 случаях.»

В письме также отмечается, что в регионе «сложилось не имеющее аналогов в масштабах страны сочетание высокого уровня техногенной нагрузки на окружающую среду региона со сложной радиационной обстановкой». Большие объемы накопленных на территории ПО «Маяк» отходов суммарной активностью более 1 млрд Ки представляют серьезную потенциальную опасность.

В настоящее время ПО «Маяк» включает два действующих реактора, производящих радионуклиды военного и гражданского назначения и пять остановленных (в 1987-1991 гг.) промышленных уран-графитовых реакторов [24].

1.3. Дозиметрическая система реки Теча

Защитные мероприятия, проводимые в связи со сложной радиационной обстановкой на реке Теча, требовали оценки доз внешнего и внутреннего облучения для жителей прибрежных населенных пунктов. Другой причиной, делающей дозиметрию для жителей прибрежных территорий р. Теча чрезвычайно важной задачей, является проведение эпидемиологических исследований [25]. Уральский научно-практический центр радиационной медицины (УНПЦ РМ) долгое время проводит медицинские наблюдения за «Расширенной Когортой реки Теча» (РКРТ) [26, 27]. Сопоставление доз облучения и соматико-стохастических медицинских последствий облучения (прежде всего лейкозов и раков) на р. Теча позволит оценить популяционный риск отдаленных последствий облучения, что необходимо для долгосрочного прогноза и планирования крупномасштабных защитных мероприятий в отношении облученного населения [28, 29, 30].

Имеющиеся подробные результаты исследования радиационной ситуации, в которых определены источники внутреннего и внешнего облучения людей, полный регистр облучившихся, уникальный банк дозиметрических данных и данных по загрязнению системы реки Теча, дают возможность реализовать систему для оценки полученных доз [31, 32, 33]. Результаты долговременных дозиметрических исследований представляют собой уникальную базу данных о содержании ^{90}Sr в организме человека, включая измерения радионуклида в костной ткани, зубах и во всем теле, которые были получены для более 15000 облученных людей за период более 45 лет. Используя наработанную базу и выборку из общего регистра индивидуальных доз, которая составляет 30762 человека, проживавших в прибрежных населенных пунктах в 1950-1959 гг. и родившихся до начала загрязнения (1949 год рождения и старше), была разработана дозиметрическая система реки Теча (Techa River Dosimetry System, TRDS-2000) [3]. Метод расчета внешней дозы,

используемый в TRDS-2000, относительно простой и может быть записан как следующее уравнение:

$$D_{o,Age}^{L} = \sum_{y=1}^{n} A_{o,Age} \cdot P_{Riv,y}^{L}\left(T_{1,Age} + k_{Out/Riv}^{L} \cdot T_{2,Age} + k_{In/Out} \cdot k_{Out/Riv}^{L} \cdot T_{3,Age}\right), \qquad (1)$$

где:

$D_{o,Age}^{L}$ – кумулятивная поглощенная доза от внешнего облучения в органе *o* отдельного индивида, проживавшего в населенном пункте L вдоль реки Теча (функция от возраста);

L – идентификатор населенного пункта на реке Теча;

y – год начала загрязнения окружающей среды;

n – год окончания внешнего облучения данного индивида;

$A_{o,Age}$ – коэффициент перевода поглощенной в воздухе дозы в поглощенную дозу в органе *o* (функция от возраста относительно *y*);

$P_{Riv,y}^{L}$ – мощность дозы в воздухе (Гр/год – 1) у уреза воды в расположении L в летний период времени года *y*;

$k_{Out/Riv}^{L}$ - среднее отношение мощности дозы в воздухе на улице данного населенного пункта L к мощности дозы у уреза воды в пункте L;

$k_{In/Out}$ - отношение мощности дозы в воздухе внутри помещений и снаружи;

$T_{1,Age}$ – время, проведенное у реки (относительно всего года) (функция возраста, относительно *y*);

$T_{2,Age}$ – время, проведенное на улице (относительно всего года) (функция возраста, относительно *y*);

$T_{1,Age}$ – время, проведенное в помещении (относительно всего года) (функция возраста, относительно *y*).

Несмотря на то, что разработанная система расчета доз согласована с имеющимися данными по загрязнению речной системы в период максимальных сбросов и большим массивом данных по содержанию ^{90}Sr в

организме человека, предусмотрена возможность усовершенствования моделей, уточнения исходных параметров и внесения дополнительной информации. Такое усовершенствование необходимо по следующим причинам. Во-первых, при оценке доз не учтены короткоживущие радионуклиды, имеющиеся в выбросах ПО «Маяк». Во-вторых, как уже было сказано ранее, в период максимальных сбросов радиоактивных отходов необходимое количество измерений на реке Теча не проводилось. Отсутствие или недостаточность дозиметрических данных обуславливает важность применения подходов ретроспективной дозиметрии [34]. Таким образом, валидация оценок доз облучения является важным фактором для подтверждения достоверности и уточнения параметров TRDS-2000. Валидация индивидуальных доз, рассчитанных с помощью TRDS, может быть сделана, с помощью различных методов: термолюминесценция, электронный парамагнитный резонанс (ЭПР) на эмали зубов, цитогенетические методы [35, 36, 37]. Настоящее исследование было сфокусировано на применении метода ЭПР дозиметрии на эмали зубов для жителей прибрежных территорий р. Теча.

1.4. Ретроспективное восстановление уровня облучения населения в результате техногенных катастроф с помощью ЭПР дозиметрии

Ионизирующее излучение индуцирует в эмали зубов человека стабильные CO_2^- радикалы. Время жизни этих радикалов оценивается в 10^7-10^9лет и их количество прямо пропорционально поглощенной дозе [38]. Метод ЭПР-дозиметрии зубной эмали позволяет оценить количество этих радикалов в зубах, удаленных по медицинским показаниям. Так определяется суммарная поглощенная доза радиации в эмали зубов, накопленная за время жизни донора (до момента экстракции зуба), включая воздействие как антропогенных, так и естественных источников излучения. Диапазон измеряемых доз – достаточно широк (10^{-1}-10^5 Гр), что является важным для реконструкции аварийных доз

облучения, и если оценка больших доз не представляет больших проблем, то оценка малых доз становится сложной задачей.

ЭПР-дозиметрия широко применяется при оценке доз персонала атомных электростанций, последствий ядерных взрывов в Хиросиме и Нагасаки, Чернобыльской аварии и некоторых других радиационных инцидентах [39-43]. Тысячи случайных людей, которые не наблюдались индивидуальными дозиметрами, были облучены. Возможность использования эмали зубов в качестве индивидуального дозиметра, которую предоставляет ЭПР дозиметрия, дала толчок к многочисленным ретроспективным популяционным исследованиям [44, 45, 46, 47].

Под действием ионизирующего излучения происходят изменения не только в тканях человека, но и в окружающих его предметах. Поэтому в качестве образца для измерений в ЭПР дозиметрии могут быть использованы сотовые телефоны [48], кредитные карты [49], сахарный песок [50]. Однако, метод ЭПР, применяемый на эмали зубов человека, является наиболее точным и чувствительным, благодаря уникальным свойствам гидроксиапатита кальция, являющегося основным строительным материалом эмали [45].

Доза, накопленная в эмали зубов в течение всей жизни человека, содержит и фоновую составляющую, и техногенную дозу, полученную вследствие радиационных инцидентов. Как показывают некоторые исследования, радиационный фон различен в зависимости от географического положения [51]. Таким образом, оценка антропогенного фактора формирования дозы невозможна без популяционных исследований радиационного фона.

Кроме того, поскольку объектом измерения являются биологические образцы, то дополнительная трудность в оценке точности измерений связана с большой вариабельностью индивидуальной чувствительности эмали к ионизирующему излучению. Так, по имеющимся в литературе данным, разброс чувствительности эмали доноров Германии составляет 10-15%, Японии – 8% [52]. В России для разных регионов и по разным оценкам чувствительность

оценивается в 10-20% [53, 54, 55]. Для жителей Уральского региона вариабельность индивидуальной чувствительности оценена в 7% для городского населения, 16.5% - для сельского [56].

Методика ЭПР измерений состоит из четырех основных этапов:

- приготовление образцов для ЭПР спектрометрии;
- непосредственно ЭПР измерения с помощью различных спектрометров;
- анализ полученных спектров, включающий в себя оценку интенсивности радиационно-индуцированного сигнала;
- пересчет интенсивности радиационно-индуцированного ЭПР сигнала в единицы поглощенной дозы (калибровка дозы). Измеряемая величина интенсивности ЭПР-сигнала нормируется на массу измеряемого образца и пересчитывается в значение дозы с использованием калибровочной кривой.

Как видно, ЭПР дозиметрия – это сложная и многоступенчатая процедура. Поэтому для построения достоверной стохастической модели ЭПР эксперимента необходим тщательный анализ каждого этапа с учетом их особенностей.

1.5. Описание ЭПР эксперимента

ЭПР дозиметрией на эмали зубов человека занимаются множество лабораторий по всему миру: Institute of Biophysics (IBP, Russia), Institute of Chemical Physics (ICP, Russia), Institute of Metal Physics (IMP, Russia), Medical Radiological Research Center (MRRC, Russia), National Institute of Standards and Technology (NIST, USA), Helmholtz Zentrum München (HMGU, Germany), Istituto Superiore di Sanita’ (ISS, Italy) и другие. Как уже было сказано ранее, ЭПР эксперимент – сложная процедура, состоящая из нескольких этапов, и на каждом этапе лаборатории используют свои подходы, методики и оборудование, что усложняет совместный анализ полученных результатов.

Методика приготовления

Перед непосредственными измерениями образцы проходят процедуру подготовки. Образец необходимо максимально очистить от различных органических компонент. Это достигается путем химического травления в щелочных растворах с использованием ультразвуковых ванн [57]. Различные лаборатории используют разные щелочи, разные времена травления и режимы промывки, а также разные ультразвуковые приборы, что приводит к заметным различиям в затем измеряемых ЭПР спектрах, включая их зашумленность.

Методы измерений

Подготовленный образец измеряют с помощью ЭПР спектрометров, которые подразделяются на несколько видов в зависимости от частоты используемого в них электромагнитного излучения. Частота излучения определяет чувствительность ЭПР сигнала на единицу дозы, а также ширину временной развертки, разрешение считываемого спектра и минимальную массу образца [58, 59].

Использование своих авторских методик в подготовке и измерениях сказывается на том, что образцы, подготовленные и прецизионно измеренные в одной лаборатории, могут быть с гораздо меньшей точностью измерены в другой [60].

Методы анализа спектров

Анализ спектра ЭПР сигнала – сложная процедура, которая сама по себе заслуживает отдельного внимания и выходит за рамки данной работы. Стоит отметить, что методы анализа спектров отличаются не только между лабораториями, но и претерпевают изменения с течением времени в процессе работы в одной и той же лаборатории. Например, в исследовательском центре HMGU в 1993-1995 гг. использовался метод селективного насыщения [61], в 1996-2002 гг. из радиационного сигнала вычитали полу-эмпирическую модель [62, 63], с 2003 года используется компьютерное моделирование спектра [64].

Калибровка

Результатом ЭПР измерений является интенсивность сигнала, которую необходимо конвертировать в значение дозы с помощью калибровочной кривой. Поэтому построение калибровочной кривой для всего диапазона измеряемых доз является одной из ключевых задач в ЭПР дозиметрии.

На сегодняшний день экспериментально установлено, что величина ЭПР-сигнала линейно увеличивается вместе с увеличением дозы в достаточно широких пределах [65, 66]. Но существует доза, когда в эмали зуба приходит насыщение CO_2^- радикалами и линейность отклика пропадает. В исследованиях [67] доза насыщения была оценена в 100 кГр, что далеко за пределами изучаемых значений доз, полученных жителями прибрежных районов р. Теча (100 Гр - летальная доза для человека). Однако в области малых значений зависимость ЭПР сигнала от дозы может быть нелинейной, что обуславливается техническими ограничениями спектрометра и анизотропией сигнала.

Для построения калибровочной кривой обычно используют следующую процедуру:

- подготавливают образцы эмали близкие по массе. Зубы принадлежат не облучавшимся людям;
- образцы группируют согласно схеме калибровочного эксперимента. Схема предписывает количество дооблучений в заданном диапазоне доз (который определяется задачами исследования) и количеством образцов, приходящихся на каждую заданную дозу.
- образцы облучаются и измеряется интенсивность радиационного сигнала для каждого;
- строится линейная регрессия для ЭПР откликов на приложенные дозы с помощью статистического метода наименьших квадратов.

Калибровочный эксперимент проводится обычно на сертифицированном оборудовании - погрешность дозы при дооблучении не превышает 3%. Однако дизайн эксперимента может существенно отличаться. Так, например, в

различных вариантах методики построения калибровочной кривой используются разные схемы облучения (диапазон и шаг дооблучения). Например, может применяться усреднение параметров линий регрессий для нескольких экспериментов с индивидуальной калибровкой (каждый из нескольких образцов последовательно дооблучается); может быть использовано, так же, построение калибровочной кривой на основе измерений индивидуальных либо смешанных образцов эмали. Различные исследователи используют разное количество зубов, а также зубы разных позиций (например, некоторые исследователи используют только зубы мудрости для минимизации естественного радиационного фона). Исследователи могут предпочитать калибровочные образцы того же возраста и из того же региона, в котором проживают облученные люди, как это было в Институте Физики Металлов (ИФМ УрО РАН, Екатеринбург, Россия), а могут использовать зубы от доноров, проживающих в иных регионах, как это делалось в Гельмгольц Центре Мюнхена (Германия) [68]. Калибровочная кривая в ЭПР лаборатории Гельмгольц Центра была построена на эмали зубов, полученных от молодых египетских доноров. Еще одним отличием метода калибровки для разных методик является использование калибровочной кривой либо калибровочного коэффициента. В первом случае из измеренной интенсивности ЭПР – сигнала вычитается свободный член уравнения линейной регрессии, описывающей результат калибровочного эксперимента, и затем только разность делится на соответствующий угол наклона. В этом подходе предполагается, что при этом исключается систематическая погрешность (в виде свободного члена, соответствующего сигналу неизвестной природы и некоторую фоновую компоненту, присущую калибровочному образцу). В случае использования калибровочного коэффициента, предполагается отсутствие влияния какого-то либо нерадиационного сигнала на детектируемую ЭПР амплитуду.

Метод калибровки является основным источником систематической ошибки результатов реконструкции доз с использованием ЭПР зубной эмали.

Согласно метрологическим рекомендациям [69], систематическая ошибка может быть оценена на основе сравнения с измерениями известной величины дозы, приложенной к гомогенному и стабильному чистому образцу (с нулевой исходной дозой). Однако, эмаль зубов – это биологический образец, для которого не существует такого “чистого” образца, который мог бы использоваться в качестве эталона.

Таким образом, для ЭПР исследований на р. Теча, выполнявшихся разными методами необходима гармонизация результатов ЭПР измерений. Под гармонизацией понимается корректировка систематических различий между результатами измерений, выполненных разными методами, чтобы сделать их единообразными для дальнейшего совместного анализа.

1.6. Показатели качества ЭПР методики и неопределенность измерений

Любые измерения, в особенности ЭПР измерения, не могут быть 100% точными, и результат измерения всегда сопровождается оценкой его неопределенности на заданном уровне надежности. **Неопределенность** – это параметр, относящийся к результату измерения и характеризующий разброс значений, которые могли бы быть обоснованно приписаны измеряемой величине [70]. Разделяют стандартную неопределенность, которая характеризуется стандартным отклонением измеряемой величины, и распространенную (расширенную) неопределенность – величина, определяющая интервал вокруг результат измерения, который, как ожидается, содержит в себе большую часть распределения значений, что с достаточным основанием могут быть приписаны измеряемой величине. В дальнейшем распространенную неопределенность будем называть **суммарной неопределенностью**, а стандартную неопределенность – просто неопределенностью. Таким образом, термин неопределенность тесно связан со

стандартным отклонением измеряемой величины, но имеет более широкий смысл.

Оценка неопределенности измерений в ЭПР дозиметрии – сложная задача, ввиду множества различных источников, привносящих ошибки в конечный результат измерений. Для ее оценки необходимо определить весь список источников, оценить и формализовать вклад каждого из них в суммарную неопределенность измерений. Это одна из причин, почему до сих пор нет стандартизированной процедуры оценки неопределенности оценки дозы в ЭПР дозиметрии.

Следуя этапам в эксперименте по проведению ЭПР измерений, выделим следующие источники неопределенностей:

1. Ошибки измерения сигнала: белый шум спектрометра, анизотропия сигнала, нестабильность спектрометра, зависимость сигнала от массы образца, анализ спектра.
2. Ошибки калибровки сигнала в дозу: параметры калибровочной кривой, вариабельность радиационной чувствительности эмали зубов.
3. Выделение дозы, связанной с изучаемым инцидентом, из полученного значения общей накопленной дозы.

Анизотропия сигнала

Плохая воспроизводимость ЭПР измерений связана с тем фактором, что интенсивность сигнала зависит от положения образца в спектрометре и его однородности. Для минимизации влияния эффекта анизотропии делают несколько измерений, между которыми смесь перемешивают и поворачивают в спектрометре. Также был предложен метод [71], когда измеряемый образец плавно поворачивался на 180^0 в процессе измерения. Даже с учетом того, что поворот образца во время измерения осуществлялся с помощью специальной аппаратуры, обеспечивающей плавность и равномерность поворота, полностью нивелировать влияние этого эффекта не удалось.

Нестабильность спектрометра

На стабильность ЭПР сигнала оказывают влияние и такие факторы, как: температура и влажность образца и окружающей среды. Сигнал может меняться в зависимости, как от времени года, так и в течение дня. Влияние этого фактора на суммарную неопределенность измерения оценивается в 3%.

Зависимость от массы

С увеличением массы образца может пропадать линейность в ЭПР сигнале. Связано это с тем, что с увеличением массы образца растет и занимаемый им объем. Для минимизации влияния этого фактора в калибровочном эксперименте измеряют образцы одинаковой массы. Обычно лаборатории используют образцы массой 100 мгр. Если это невозможно – результат измерений необходимо корректировать.

Калибровка амплитуды ЭПР сигнала в значение дозы

Калибровочная кривая – это линейная регрессия, которая строится методом наименьших квадратов по результатам измерений. Ошибка калибровки связана с тем, что коэффициенты этой линейной регрессии оцениваются с некоторой статистической ошибкой.

Индивидуальная радиационная чувствительность

Как уже было сказано ранее, у разных зубов может быть разная радиационная чувствительность [55, 72-75]. Обычно привносимую этим фактором ошибку оценивают в 10% [76, 77, 21]. Кроме того, очень важно использовать те же процедуры подготовки образцов, их измерения и анализа спектров, что и в калибровочном эксперименте. Было показано, что индивидуальная радиационная чувствительность может зависеть от процедуры подготовки образцов и отличаться в 2 раза (5% и 10%) [78]. Также любопытным фактором является то, что наличие кариеса в эмали зуба на чувствительность не влияет [79].

Неизвестная фоновая составляющая дозы

Для оценки дозы, полученной в результате изучаемого инцидента, из результата ЭПР измерения необходимо вычесть фоновую дозу, которая была

накоплена в эмали зуба в течение жизни человека до изучаемого инцидента под влиянием таких источников облучения, как: естественный радиационный фон, доза, приобретенная в результате медицинских исследований. Очевидно, что значение этой дозы неизвестно для конкретного человека, и она может быть оценена лишь с некой погрешностью. Кроме того, фоновые дозы зависят от конкретной популяции: для жителей г. Озерска ежегодная доза от фонового облучения оценена в 0.7±0.3 мГр [80], в других исследованиях средняя оценка ежегодной фоновой дозы оценена в 1 мГр/год [81, 82, 83]. В исследованиях другой популяции фоновая доза оценена в 4-5 мГр/год [84]. Именно поэтому важны популяционные исследования.

Все эти источники привносят свой вклад в суммарную неопределенность ЭПР измерений. Из-за различий между ЭПР методиками вклад от каждого источника отличается от методики к методике. Влияние различных подходов на каждом этапе ЭПР эксперимента на результат измерения было исследовано ранее [7], где одной из рекомендаций указана необходимость выдержки образца после облучения и перед измерением по меньшей мере 1 месяц.

ЭПР дозиметрия хорошо применима для измерения небольших доз ([7]), однако при этом в случае измерений необлученных образцов для установления фоновой дозы, неопределенность полученных оценок сопоставима с самим значением дозы. С помощью ЭПР измерений нельзя на достаточном уровне значимости различить необлученные и облученные малой дозой (100 мГр) образцы [85]. Уровень дозы, при котором на высоком уровне значимости статистическими тестами подтверждается нулевая гипотеза «образец не облучен», называется критическим значением дозы, или **критическая доза (DC)**; уровень, когда подтверждается гипотеза «образец был облучен» - **предел детектирования (LDD)** [86, 87]. Оба этих параметра являются важными показателями качества используемой в лаборатории ЭПР методики. Аналогично оцениваются такие значения, как **критическая амплитуда (AC)** ЭПР сигнала и ее **предел детектирования (LDA)**.

Также интересным параметром, связанным с показателями качества метода и экспериментальными данными, является **предел индивидуализации** – значение дозы, которое на высоком уровне значимости находится выше фонового уровня. Предел индивидуализации учитывает индивидуальную чувствительность эмали зубов к ионизирующему облучению и фоновую составляющую дозы, которой обладал образец до облучения в результате изучаемого инцидента.

1.7. Существующие подходы к оценке неопределенности ЭПР измерений

Основным документом, дающим определение термину «неопределенность» и описывающим методы для оценки, является «Руководство по оценке неопределенности измерений» (Guide to the expression of uncertainty in measurement) [69]. Согласно этому документу для оценки неопределенности измерений необходимо определить математическую модель, описывающую измеряемую величину (Y) в зависимости от входных параметров $a, b, \ldots, n$ (2).

$$Y = f(a, b, \ldots, n) \tag{2}$$

Функция (2) должна учитывать все возможные источники неопределенностей, которые влияют на конечный результат. Результат измерений подвергают корректировке (Y_{corr}), учитывая произвольные (статистические) и систематические ошибки:

$$Y_{corr}(x_i, F_i, C_k) = f(x_i) \cdot \prod_{i}^{N} F_i + \sum_{k}^{M} C_k, \tag{3}$$

где x_i - вектор входных параметров $(a, b, \ldots, n)$;

F_i – мультипликативный корректирующий фактор;

C_k - аддитивный корректирующий фактор.

В случае, когда входные параметры независимы между собой, формула для расчета суммарной неопределенности $u(Y_{corr})$ будет иметь вид:

$$u(Y_{corr})^2 = \left[\frac{\partial f}{\partial a}\right]^2 u(a)^2 + \cdots + \left[\frac{\partial f}{\partial n}\right]^2 u(n)^2 + \left[\frac{\partial f}{\partial F_1}\right]^2 u(F_1)^2 + \cdots + \left[\frac{\partial f}{\partial F_N}\right]^2 u(F_N)^2 + \left[\frac{\partial f}{\partial C_1}\right]^2 u(C_1)^2 + \cdots + \left[\frac{\partial f}{\partial C_M}\right]^2 u(C_M)^2, \quad (4)$$

где $u(\cdot)$ – стандартная неопределенность входного параметра.

В предыдущих работах были даны различные оценки суммарной неопределенности в ЭПР измерениях:

- 65 мГр и 15% для доз 100 мГр и 1 Гр соответственно [45];
- 25 мГр для доз ниже 250 мГр и 10% для остальных доз [88];
- 70 мГр для доз ниже 280 мГр и 25% для остальных доз [89];
- 20-30 мГр + 10-15% для всего диапазона доз [82].

Позже было показано, что иногда рассчитанные оценки неопределенностей – некорректны [90]. Поэтому есть необходимость в создании единого метода оценки неопределенности ЭПР дозиметрии.

В работе [60] был предложен метод оценки неопределенности ЭПР измерений, который, помимо прочего, является практически единственным описанным методом оценки показателей качества различных методик ЭПР дозиметрии на эмали зубов. Предложенный подход основан на аналитической модели, параметры которой оцениваются на основе анализа данных, полученных в калибровочном эксперименте. Для их оценки используются зависимости стандартных отклонений 3х повторных ЭПР измерений от измеренной дозы и рассеяния данных относительно калибровочной кривой. Модель была разработана и верифицирована на основе анализа результатов измерений одной из лабораторий-участниц межлабораторного калибровочного эксперимента. Авторы предположили, что данная аналитическая модель может применяться и для других методик ЭПР дозиметрии.

1.7.1. Описание аналитической модели оценки неопределенности

Предложенный метод базируется на следующих предположениях:

1. Суммарная неопределенность оценки ЭПР дозиметрии эмали зубов σ_{tot} складывается из двух компонент: неопределенность оценки фоновой дозы σ_{blank} (связанной с естественным радиационным фоном) и оценки техногенной дозы σ_{dosed} (искомая величина, связанная с радиационными инцидентами). Параметр, соответствующий вариации фоновых доз σ_{blank}, определяется рассеянием результатов измерений необлученных образцов.

$$\sigma_{tot}^2 = \sigma_{blank}^2 + \sigma_{dosed}^2 \quad (5)$$

2. Неопределенность оценки техногенной дозы σ_{dosed} связана, прежде всего, с воспроизводимостью ЭПР измерения, которая зависит от величины измеряемой дозы, и описывается также двумя компонентами:
   - постоянная - σ_{const} ассоциируется в основном со спектральным шумом, оценивается по отклонению ЭПР измерений эмали, облученной известной дозой, от калибровочной кривой;
   - относительная - σ_{rel}, связанная с анизотропией ЭПР сигнала.
3. Когда ЭПР сигнал существенно превышает величину спектрального шума (высокие дозы), воспроизводимость ЭПР измерений определяется в основном второй компонентой. Обе компоненты σ_{dosed} чувствительны к алгоритму анализа спектров. Зависимость σ_{dosed} от величины измеряемой дозы D определяется уравнением (6).

$$\sigma_{dosed}^2 = \left[\sigma_{const}^2 + \left(\frac{\sigma_{rel} \cdot D}{100}\right)^2\right] \cdot \theta(D - DC) \quad (6)$$

   Где $\theta(D - DC) = 1 - e^{-\frac{D}{DC}}$ - функция, определяющая характер дозовой зависимости неопределенности σ_{dosed}.
4. Неопределенность оценки внешней дозы вносит значимый вклад в суммарную неопределенность только тогда, когда полученная доза выше критической DC. Критическая доза, в свою очередь

определяется по рассеянию измерений фоновых доз и равна 95-й процентили их распределения. В данной работе они рассчитывались согласно уравнению (7) в приближении нормального распределения фоновых доз.

$$DC = 1.645 \cdot \frac{|\sigma_{blank}|}{b} \quad (7)$$

Модель разрабатывалась и верифицировалась изначально для метода ЭПР дозиметрии зубной эмали использующегося в ЭПР лаборатории исследовательского центра Гельмгольца (HMGU, Мюнхен). Оценки параметров модели для всех 9-ти методик приведены в таблице (Таблица 1). Методика, на основе которой разрабатывалась модель, представлена в таблице под номером 9. Именно потому, что модель изначально была разработана для этой методики, параметры здесь оценены с наименьшим рассеянием.

Таблица 1 - Параметры аналитической модели (приведены по данным [57])

Номер методики ЭПР дозиметрии	Параметры			
	σ_{blank}, мГр – мат.ожид. (ст. откл.)	σ_{rel},% - мат.ожид. (ст. откл.)	σ_{const}, мГр – мат.ожид. (ст. откл.)	DC – критическая доза, мГр
1	66(72)	11(5)	51(141)	157
2	46(26)	7(2)	0(>10000)	104
3	112(52)	9(7)	83(120)	242
4	60(33)	4(6)	90(33)	165
5	22(37)	0(>1000)	50(28)	56
6	30(19)	5(1)	43(19)	63
7	35(42)	7(4)	70(34)	77
8	36(14)	5(1)	30(23)	88
9	10(2)	2(0.2)	37(1)	22

1.8. Дозы от фонового облучения для жителей Уральского региона

Источниками облучения являются естественный радиационный фон Земли, который подвергается активному воздействию в результате деятельности человека, и искусственный радиационный фон. Естественный радиационный фон представляет собой ионизирующие излучение от природных источников космического и земного происхождения. Он изменяется из-за радионуклидов, поступающих вместе с извлекаемыми полезными ископаемыми. Искусственный радиационный фон обусловлен радиоактивным загрязнением внешней среды в результате испытаний ядерных боеприпасов и выбросов радионуклидов предприятиями атомной энергетики и промышленности [91]. Помимо естественного и искусственного радиационного фонов человек подвергается ионизирующему излучению при прохождении медицинских исследованиях и в процессе профессиональной деятельности с использованием различных источников излучения.

Как уже было отмечено выше, было проведено множество исследований для оценки фонового уровня облучения от естественных источников излучения.

В глобальном масштабе принято считать, что средняя фоновая доза находится в диапазоне 0.6-1.6 мГр/год с медианным средним в 0.9 мГр/год [81]. Но уровень фоновых доз может значительно меняться от популяции к популяции. Связано это с географическим положением (разная интенсивность космического излучения) и различным числом естественных источников облучения (радоновые воды, городская/сельская местность) [92]. Поэтому изучение фоновых уровней облучения для различных популяций становится важной и неотъемлемой задачей в оценке техногенной дозы, полученной в результате изучаемого инцидента.

В работе [93] впервые были проведены исследования доз облучения жителей челябинской области за счет естественного γ-фона территорий и зданий. Измерения проводились в различных населенных пунктах (города и села), а также на открытой местности и зданиях. Установлено, что:

1. Уровень фонового излучения на территории челябинской области на открытой местности достаточно равномерен со средним значением 1 мГр/год как для населенных пунктов, так и вне них.
2. Уровень фонового излучения в кирпично-каменных и железобетонных зданиях в среднем 1.5 мГр/год, в деревянных – в 1.5 раза ниже и не отличается от уровня облучения на открытой местности.

Для изучения фоновых уровней ЭПР сигнала в эмали жителей Уральского региона было исследовано 218 зубов (63 моляра, 128 премоляров и 27 резцов), отобранных из банка тканей УНПЦ РМ [94]. Эти образцы зубов были удалены у сельских жителей, проживающих на незагрязненных территориях Уральского региона.

Ультрафиолетовая компонента солнечного света вносит добавочный вклад в фоновую ЭПР дозу, поглощенную в эмали передней поверхности резцов [95]. В связи с этим, для ЭПР измерений рекомендуется использовать задние зубы или эмаль с внутренней стороны передних зубов. К сожалению, в ряде случаев невозможно было измерить отдельно эмаль с внешней и

внутренней стороны передних зубов облученных доноров (в связи с малой массой эмали). Для анализа таких случаев измерялся ЭПР сигнал всей эмали, и, соответственно, было оценено значение ЭПР дозы (включая вклад ультрафиолетового облучения).

Статистически значимой возрастной зависимости фоновых доз в исследуемом возрастном диапазоне (45-95 лет) для жителей Уральского региона 1910-1953 годов рождения обнаружено не было. Ожидаемая возрастная зависимость, возможно, маскируется значительной вариабельностью индивидуальных данных. Средняя фоновая доза для задних зубов (премоляры и моляры) была оценена как 90±24 мГр, что соответствует среднему облучению в 1.3 мГр/год. Для передних зубов средняя фоновая доза для эмали внутренней поверхности равна 121±48 мГр (1.7 мГр/год), для эмали внешней поверхности – 234±79 мГр (3.3 мГр/год). Для эмали передних зубов в целом (внутренняя и внешняя поверхность вместе) средняя фоновая доза равна 154±55 мГр (2 мГр/год).

1.9. Заключение к литературному обзору

В современной истории человека произошло множество радиационных аварий, которые оказали значительное разрушительное влияние на экологическую обстановку и здоровье человека. Для защиты человека от радиационного воздействия Международной комиссией по радиологической защите (МКРЗ) были разработаны нормы радиационной безопасности. Российская Федерация на основе принципов от МКРЗ разработала и приняла свои стандарты, которые представлены в документе «НРБ-99/2009».

Среди множества радиационных аварий на долю Уральского региона выпало 3 из них. В результате произошедших аварий в регионе «сложилось не имеющее аналогов в масштабах страны сочетание высокого уровня техногенной нагрузки на окружающую среду региона со сложной радиационной обстановкой».

Защитные мероприятия, проводимые в связи со сложной радиационной обстановкой на реке Теча, требовали оценки доз внешнего и внутреннего облучения для жителей прибрежных населенных пунктов. Для их расчета была разработана дозиметрическая система реки Теча (Techa River Dosimetry System, TRDS-2000), для валидации которой, используется, в том числе, электронный парамагнитный резонанс (ЭПР) на эмали зубов.

ЭПР дозиметрия – это сложная и многоступенчатая процедура, включающая в себя этапы подготовки образцов, их измерения, анализ полученных спектров ЭПР сигнала и калибровка значения сигнала в дозу. Каждый из этапов привносит свой вклад в общую неопределенность конечного результата измерений. Для ее оценки необходимо определить весь список источников, оценить и формализовать вклад каждого из них в суммарную неопределенность измерений. Кроме того, из-за различий в методиках и инструментарии, в результате каждая лаборатория использует свою ЭПР методику. Поэтому для совместного анализа полученных результатов необходима их гармонизация. Под гармонизацией понимается корректировка систематических различий между результатами измерений, выполненных разными лабораториями, чтобы сделать их единообразными для дальнейшего совместного анализа. Оценка систематических ошибок каждой ЭПР методики требует единого подхода к оценке показателей ее качества, а также учет фоновой составляющей полученной в результате измерения дозы.

Глава 2. Материалы и методы

2.1. Описание калибровочного эксперимента

С развитием ЭПР дозиметрии все больше лабораторий проводили эксперименты. Для сравнения полученных ими результатов измерений необходимо знать показатели качества используемых в лабораториях ЭПР методов (критическая доза, предел детектирования). Отсутствующие стандарты по оценке этих параметров сделали необходимым проведение сравнительных калибровочных экспериментов в нескольких лабораториях. Полученные данные помогут создать стандартизированную процедуру по оценке показателей качества ЭПР метода для любой лаборатории.

В основу данной работы легли экспериментальные данные, полученные при интеркалибровке трех ЭПР лабораторий: HMGU (Мюнхен, Германия), ISS (Рим, Италия) и IMP (Институт Физики Металлов, Екатеринбург, Россия). Каждая лаборатория, согласно собственному протоколу, приготовила однородную смесь из эмали зубов. Смесь в дальнейшем была разделена на 30 порций (по 95-110 мг каждая). Порции дооблучались согласно схеме, представленной в таблице (Таблица 2). Каждая порция трижды повторно измерялась методом ЭПР; результаты усреднялись и нормировались на массу. То есть для каждой дозы облучения имелось 5 значений интенсивности ЭПР отклика, полученных на основе трех повторных измерений. Затем лаборатории обменивались образцами и опять проводили измерения.

Таблица 2 - Схема дооблучения образцов

Доза облучения, мГр	0	100	200	500	1000	1500
Количество образцов	5	5	5	5	5	5

Таким образом, всего было получено 9 пулов экспериментальных данных, которые использовались для сравнения показателей качества ЭПР методов

лабораторий и установления универсальной и стандартной процедуры для их оценки. Дополнительно к тем 30 образцам, которые подготавливались и измерялись каждой лабораторией, лаборатория IMP дополнительно подготовила и измерила 22 образца. Подробное описание методик представлено в [60].

Таблица 3 - Список методик и количество измеренных образцов

ЭПР методика (приготовление/измерение)	Количество образцов	Средняя масса образцов, мг
IMP/IMP	52	105
IMP/ISS	30	100
IMP/GSF	30	99
ISS/IMP	30	99
ISS/ISS	30	99
ISS/GSF	30	115
GSF/IMP	30	107
GSF/ISS	30	96
GSF/GSF	30	114

2.2. Исследование уровней фоновых доз на территории Южного Урала

Для оценки фона были проанализированы ЭПР измерения зубов 167 доноров 1908-1968 годов рождения. На момент удаления зубов они проживали в селах, расположенных на территориях Южного Урала, не подвергавшихся радиоактивному загрязнению (помимо глобальных выпадений). Согласно опросникам, они никогда не проживали в загрязненных районах. Этнический состав доноров представлен русскими, татарами и башкирами: 77% славян и 23% тюрков. Среди них 64% женщин и 36% мужчин. В рамках настоящего исследования доноры не группировались по национальному либо по половому признаку. Зубы удалялись по медицинским показаниям в сельских стоматологических клиниках в период с 1997 по 2008 годы. В этот период рентгенодиагностика зубов проводилась для 80% сельских доноров. Возраст

доноров на момент удаления зубов был от 37 до 93 лет, причем большинство возрастов (70%) принадлежали узкому интервалу от 50 до 70 лет. Средний возраст составил 62 года. Всего было исследовано 199 премоляров и моляров (некоторые доноры предоставили по нескольку зубов) (Таблица 4) и 135 резцов (Таблица 5). Измерения проводились теми же тремя лабораториями: ИФМ, HMGU и ISS.

Таблица 4 - Фоновые измерения моляров и премоляров

Номер методики	Лаборатория	Годы измерения	Количество зубов
1	IMP	2000- 2001	50
2	IMP	2002	12
3	IMP	2003	25
4	HMGU	2002	18
5	HMGU	2007-2009	67
6	ISS	2005-2008	27
Всего			199

Таблица 5 - Фоновые измерения резцов

Номер методики	Лаборатория	Часть эмали	Годы измерения	Количество зубов
1	IMP	Вся	2001	11
2	IMP	Передняя	2000-2001	19
3	IMP	Задняя	2000-2001	17
4	ISS	Задняя	2007-2008	30
5	HMGU	Передняя	-	40
6	HMGU	Задняя	-	18
Всего				135

2.3. Измерения доз у жителей прибрежных районов реки Теча

В результате загрязнения реки Теча радиоактивными отходами в 1949-1956 годах облучению подверглись около 30000 жителей прибрежных

территорий. Зубы, удаленные по медицинским показаниям, были подготовлены и измерены уже упомянутыми ранее лабораториями: HMGU, ISS и IMP. Измерения проводились в 2000-2011 годах, и всего было получено 106 значений доз. Из них было 26 измерений резцов и 80 измерений моляров и премоляров. Средний возраст донора на момент удаления зуба – 66 лет. Все измерения были разделены на несколько категорий, в зависимости от расстояния от точки сброса радиоактивных отходов до места постоянного проживания донора вниз по течению реки. Распределение измерений по категориям представлено в таблице (Таблица 6).

Таблица 6 - Данные измерений на реке Теча

Номер категории	Место проживания/облучения	Расстояние до точки сброса, км	Количество измерений
1	с.Метлино	7	17
2	Теча-брод, с.Старое Асаново	18-33	8
3	с.Малое Таскино, с.Герасимовка	41-43	13
4	с.Надырово	50	10
5	с.Ибрагимово, с.Исаево, ПХТ-42	54-65	42
6	с.Муслюмово, с.Курманово	78-88	12
7	с.Бродоколмак, с.Бакланово, с.Ключевское.	109-223	4

Максимальная измеренная доза в 2.7 Гр была получена в с.Метлино (7 км до места сброса отходов).

2.4. Анализ универсальности аналитической модели

Для проверки применимости предложенной аналитической модели в работе [96] было проведено стохастическое моделирование эксперимента с помощью метода Монте-Карло. Поскольку параметры модели оценивались с помощью метода наименьших квадратов, то для проведения стохастического

эксперимента их моделирование осуществлялось с помощью нормальной случайной величины со средними значениями и стандартными отклонениями из таблицы (Таблица 1).

Нормальная случайная величина ξ, моделируемая по заданным параметрам m - математическое ожидание и σ - среднеквадратичное отклонение, вычислялась, используя формулу (8):

$$\xi = \sigma \cdot \left(\sum_{i=1}^{12} \lambda_i - 6 \right) + m \tag{8}$$

где, λ_i - случайное число из интервала от 0 до 1, полученное с помощью генератора псевдослучайных чисел Borland C++ Builder 6.0.

Для каждого значения дозы по аналогии с методикой физического эксперимента (Таблица 2) проводились розыгрыши нормальных случайных величин ζ_{blank}, ζ_{const}, ζ_{rel} с соответствующими параметрами математического ожидания и среднеквадратического отклонения из таблицы (Таблица 1). Суммарная неопределенность ζ_{tot} рассчитывалась по формуле (9), полученной из системы (1-3).

$$\zeta_{i,tot} = \sqrt{\zeta_{i,blank}^2 + \left(\zeta_{i,const}^2 + \left(\frac{\zeta_{i,rel} \cdot D}{100} \right)^2 \right) \cdot \left(1 - e^{-\frac{D}{DC}} \right)} \tag{9}$$

где $\zeta_{i,x}$ - i-ая реализация соответствующей случайной величины.

В качестве математического ожидания (10) и среднеквадратичного отклонения суммарной неопределенности (11) использовались их несмещенные оценки:

$$m(\zeta_{tot}) = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N} \zeta_{i,tot} \tag{10}$$

$$\sigma^2(\zeta_{tot}) = \frac{1}{N-1} \sum_{i=0}^{N} \left(\zeta_{i,tot} - m(\zeta_{tot}) \right)^2 \tag{11}$$

Количество розыгрышей комбинаций случайных величин должно быть таким, чтобы оценка математического ожидания имела погрешность менее 1% с вероятностью 0.99 для всех методов (9).

$$p\{|m^* - m| < 0.01 \cdot m\} \geq 0.99 \qquad (12)$$

где $m^* = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} \zeta_i$ - несмещенная оценка математического ожидания.

2.4.1. Сравнение стохастических и аналитических оценок

Для сравнения двух оценок необходимо проверить как достаточность экспериментальных данных, так и универсальность аналитического описания (1-3). Большинство параметров модели оценены с большой погрешностью. Точность оценок практически всех параметров модели превышает 30% от их среднего значения, за исключением методики под номером 9. Это может быть обусловлено 2-мя причинами: либо статистической недостаточностью экспериментальных данных (неуниверсальность экспериментальной постановки в методике), либо невозможностью оценить параметры данной модели по данным, полученным с использованием иной методики (неуниверсальность модели). Кроме того, возможно, что какая-нибудь методика плохо применима к образцам, приготовленным в другой лаборатории. В таком случае, говорить об оценке неопределенности измерений не имеет смысла.

Предположим, что метод оценки неопределенности корректен и универсален, а слишком большое рассеяние подгоночных параметров в методах 2 и 5 связано с плохой применимостью методик к исследуемым образцам. Тогда для методик 1, 3, 4, 6, 7 и 8 аналитическая оценка неопределенности оценки дозы должна совпасть со стохастической оценкой (здесь мы допускаем систематический сдвиг). Дополнительным условием применимости данной модели к конкретному методу полагаем, что стандартное отклонение стохастически моделируемой неопределенности не должно превышать 25% от его среднего значения (мы принимаем это значение за удовлетворительную точность модели). Если вышеназванные условия по удовлетворительной

точности рассматриваемой модели не выполняются, то следует проверить экспериментальную постановку на универсальность. Если экспериментальная постановка окажется удовлетворительной для всех методов, то мы не обнаружим значимой корреляции между ошибками оценок параметров модели и разницей между аналитическим и статистическим описанием. Если ошибки параметров модели не коррелируют с разницей между 2-мя описаниями, то сама модель - не универсальна.

Глава 3. Построение стохастической модели

3.1. Применимость аналитической модели неопределенности ЭПР измерений

Предложенная в работе [60] аналитическая модель оценки неопределенности ЭПР измерений была разработана на основе экспериментальных данных одной из лабораторий, участвовавшей в калибровочном эксперименте. По результатам анализа были представлены уравнения (1-3), с помощью которых оценивалась неопределенность измерений. Параметры представленной аналитической модели - σ_{blank}, σ_{rel}, σ_{const}, DC, были также оценены для каждой из методик и представлены в таблице (Таблица 1). Авторы предположили, что полученная аналитическая модель может выдавать приемлемые оценки неопределенности и для других методик ЭПР дозиметрии.

В предыдущей главе было предложено проверить это предположение, используя стохастическое моделирование параметров аналитической модели методом Монте-Карло. Для достижения необходимого уровня значимости получаемых оценок, надо оценить требуемое количество измерений (12).

3.1.1. Оценка необходимого количества моделируемых измерений

Чтобы оценить требуемое количество испытаний в моделируемом стохастическом эксперименте(11), необходимы предварительные оценки m^* и σ^*. Эти оценки получим, положив, первоначально, n равное 100.

Известно [97], что тогда N должно удовлетворять следующему неравенству (13):

$$2 \cdot F\left(\frac{0.01 \cdot m}{\sigma} \cdot \sqrt{N}\right) - 1 \geq 0.99 \qquad (13)$$

где F – функция распределения нормальной случайной величины с нулевым математическим ожиданием и дисперсией равной 1.

Из формулы (13) получаем:

$$N \geq \frac{2.58^2 \cdot \sigma^2}{0.01^2 \cdot m^2} \quad (14)$$

Неизвестное математическое ожидание m заменим на его нижнюю оценку (15):

$$m^* - \varepsilon_m \leq m \quad (15)$$

где, $\varepsilon_m = \frac{\sigma^* \cdot t_{0.995}}{\sqrt{n}}$,

$t_{0.995}$ - аргумент функции распределения Стьюдента с n степенями свободы со значением 0,995 (надежность оценивания),

$\sigma^{*2} = \frac{1}{n-1}\sum_{i=0}^{n}(\xi_i - m^*)^2$ $\sigma^{*2} = \frac{1}{n-1}\sum_{i=0}^{n}(\zeta_i - m^*)^2$ - несмещенная оценка дисперсии.

Среднеквадратичное отклонение, наоборот, заменим на его верхнюю оценку (16):

$$\sigma^2 \leq \frac{(n-1)\sigma^{*2}}{\lambda} \quad (16)$$

где, $\lambda = G_{n-1}^{-1}\left(\frac{1-0.995}{2}\right)$,

$G_{n-1}^{-1}(x)$ - функция распределения хи-квадрат с n-1 степенями свободы.

Таким образом, окончательно для N получим следующую оценку (17):

$$N \geq \frac{2.58^2 \cdot (n-1)\sigma^{*2}}{0.01^2 \cdot \lambda \cdot (m^* - \varepsilon_m)^2} \quad (17)$$

Проведя численный эксперимент для n=100 и рассчитав для него оценки m^* и σ^*, получим по формуле (17), что N необходимо взять равным 10000. Поэтому для каждого значения моделируемой дозы проводилась серия из 10000 розыгрышей параметров модели, по которым получали 10000 значений суммарной неопределенности измерений.

Решения, полученные стохастическим моделированием, сравнивались с аналитическим выражением, получаемым подстановкой в уравнения (1-3) значений σ_{blank}, σ_{const}, σ_{rel} (Таблица 1).

3.1.2. Сравнение стохастических и аналитических оценок

На Рисунок 1 приведено сравнение стохастических и аналитических оценок неопределенности измерений дозы для методики под номером 9, на основе которой была разработана данная аналитическая модель.

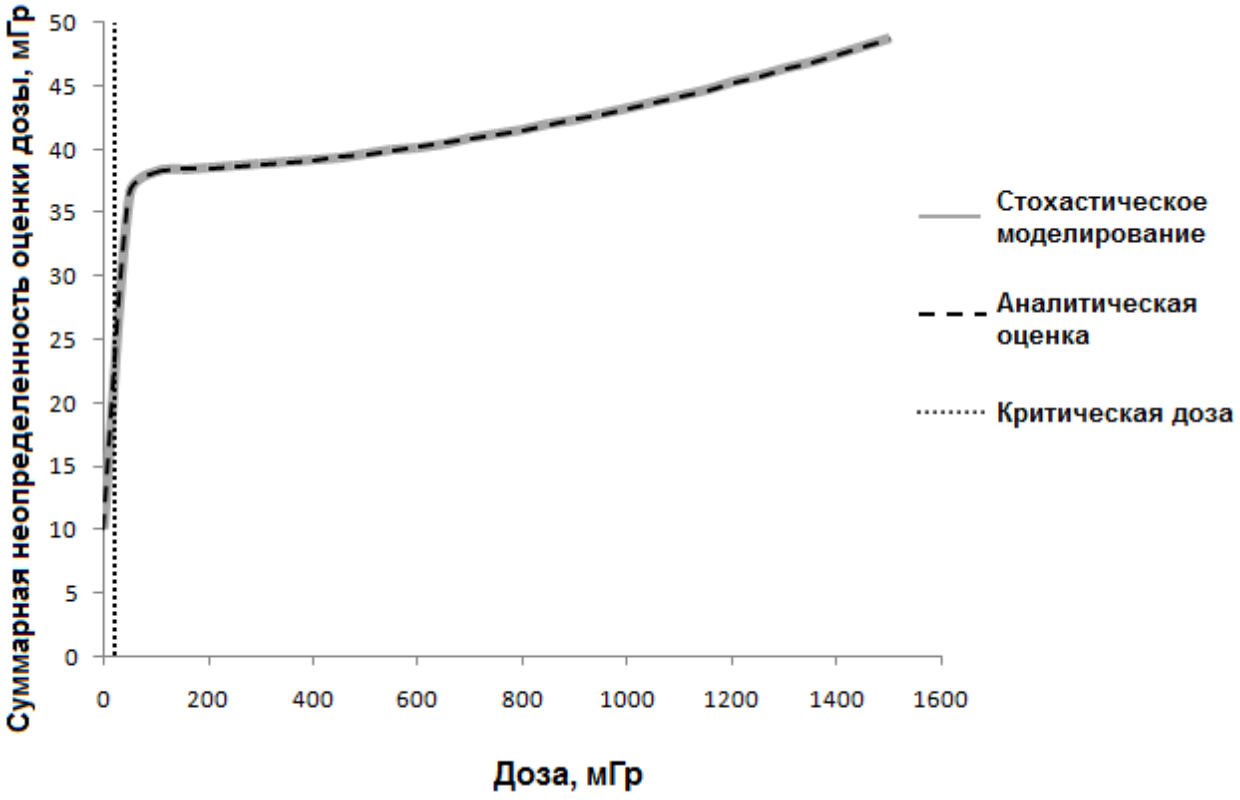

Рисунок 1 – Сравнение стохастических и аналитических оценок неопределенности измерений дозы для методики 9

Для методик 1, 3, 4, 6, 7 и 8, которые мы условно приняли за «хорошие», было проведено стохастическое моделирование и сопоставление полученных неопределенностей с аналитическими оценками. Сравнение показало, что результаты стохастического моделирования смещены для большинства методик относительно аналитических оценок. На Рисунок 2, на примере методик 6 и 3 показаны сопоставления неопределенностей оценки дозы (а,б) и корреляции между 2-мя оценками стандартных отклонений, полученными на интервалах доз выше критического значения (в,г).

Для методики 6 наблюдается систематический сдвиг данных стохастического моделирования относительно данных аналитического (Рисунок 2а,в). С поправкой на систематический сдвиг результаты расчета модели можно считать удовлетворительными. Для методики 3 кроме систематического сдвига присутствует различие между наклонами линии полного совпадения и линии регрессии (Рисунок 2г) и одной только поправкой на систематический сдвиг полного совпадения добиться не удастся. Это различие в наклоне ожидаемой и наблюдаемой регрессий означает, что модель (1-3) не может быть признана удовлетворительной применимо к методу 3.

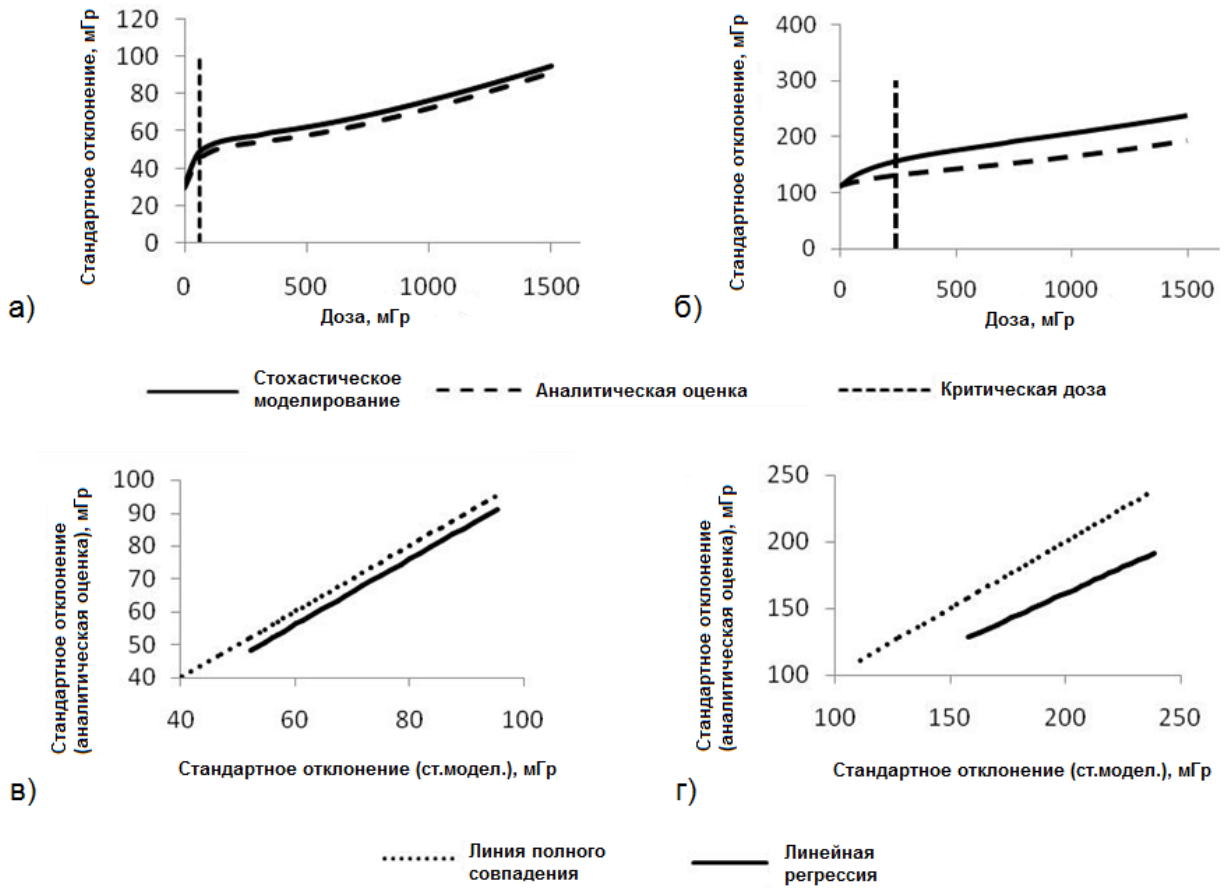

Рисунок 2 - Примеры сопоставления аналитических и стохастических оценок неопределенностей для методик 6 и 3: а) зависимость неопределенности оценки дозы для методики 6; б) зависимость неопределенности оценки дозы для методики 3; в) корреляция между оценками стандартных отклонений для методики 6; г) корреляция между оценками стандартных отклонений для методики 3

Таким образом, параметры линейной регрессии между данными аналитического и стохастического расчетов являются показателями корректности и, следовательно, применимости рассматриваемой аналитической модели для различных методик ЭПР дозиметрии. Как показывает анализ – линейная регрессия хорошо описывает корреляцию между стандартными отклонениями для всех рассматриваемых методов. Параметры регрессий приведены в таблице (Таблица 7).

Таблица 7 – Параметры уравнений линейной регрессии, описывающей корреляцию между стандартными отклонениями, полученными аналитически (переменная y) и методом статистического моделирования Монте-Карло (переменная x)

Номер методики ЭПР-дозиметрии	Параметры уравнения линейной регрессии y=y0+ax*	
	y0	a
1	-86(±7)	1,1(±0,03)
3	4 (±5)	0,79(±0,02)
4	49(±4)	0,5(±0,03)
6	-3,7(±0,7)	1(±0,01)
7	-9 (±1)	0,96(±0,01)
8	-5,6(±0,5)	1,018(±0,006)

*оценки регрессий являются достоверными на уровне значимости $\alpha = 0.05$.

Наибольшее различие между аналитическими и статистическими оценками наблюдается для методик с большей критической дозой. Тем не менее, критическая доза не является очевидным показателем применимости модели. Например, для методики 5 нельзя оценить параметр σ_{rel} из-за большого рассеяния, хотя значение критической дозы невелико.

Для методик 3 и 4 мы не можем принять результаты аналитического расчета, т.к. наклон регрессионных прямых значительно отличается от 1. Тем не менее, для большинства методов угол наклона близок к единице, что свидетельствует о систематическом смещении статистических решений от аналитических оценок. Для методик 1, 6, 7, 8 мы можем использовать поправку на систематический сдвиг (C=const), которую можно взять равную –y0 (y0 с обратным знаком) из таблицы (Таблица 7). Систематическое смещение возникает из-за формы распределения суммарной неопределенности измерений дозы, которая не является нормальной для всех методов на всем исследуемом

интервале. На рисунке (Рисунок 3а) представлена гистограмма значений суммарной неопределенности в сравнении с ожидаемой нормальной плотностью для методики 1 и дозы 200 мГр. Экспериментальные значения суммарной неопределенности не могут быть надежно описаны каким-либо стандартным распределением, таким как нормальное или логнормальное распределение.

Также с ростом дозы наблюдается увеличение стандартного отклонения стохастически моделируемой неопределенности для методик 1, 3, 4, 7 (Рисунок 3б). На рисунке представлена зависимость для методики 3, на котором видно, что стандартное отклонение увеличивается в два раза на исследуемом интервале доз от 0 до 1500 мГр. Поэтому для больших значений доз точность оценки неопределенности хуже для методов 1, 3, 4, 7.

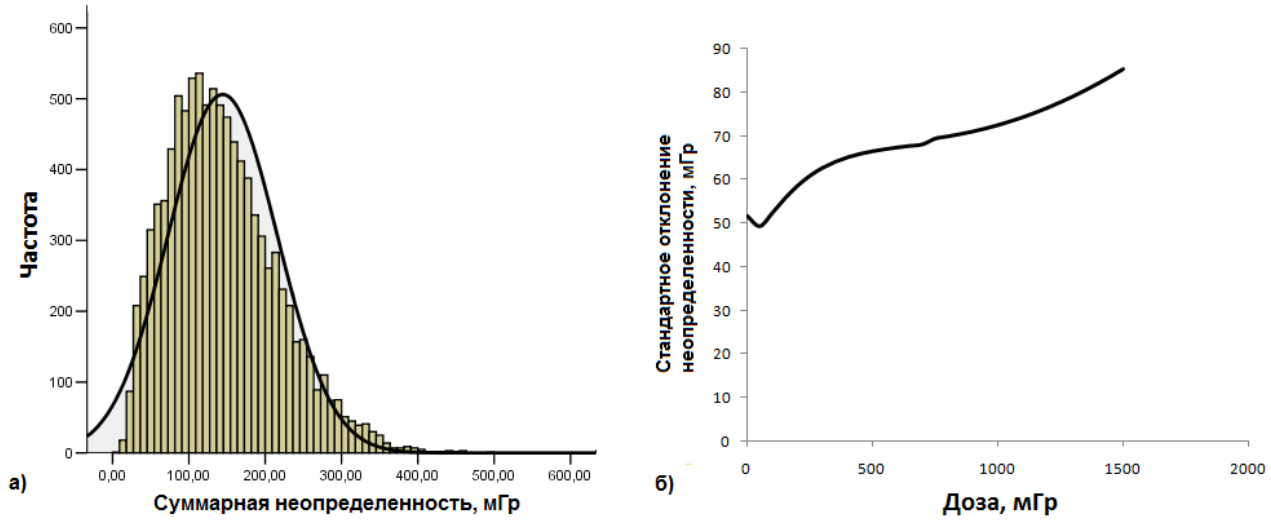

Рисунок 3 – а) гистограмма значений суммарной неопределенности и график плотности нормального распределения для методики 1 и дозы 200 мГр, б) зависимость стандартного отклонения неопределенности от дозы для методики 3

В таблице (Таблица 8) представлены минимальные и максимальные значения стандартного отклонения моделируемой неопределенности и ширина 95% доверительного интервала в процентном отношении от среднего значения.

Корреляционный анализ проводился для значений доз выше критического уровня.

Таблица 8 – Стандартное отклонение суммарной неопределенности измерений дозы, полученных стохастическим моделированием

Номер методики	Процентные доли от среднего значения (%) для	
	стандартного отклонения	ширины 95% доверительного интервала
1	33-50	56-92
3	33-38	56-69
4	26-33	44-59
6	17-32	28-52
7	29-38	47-67
8	17-32	30-56

Как видно из таблицы точность решений системы (1-3) сильно различается. В допущении, что для применимости модели стандартное отклонение неопределенности, полученной стохастическим моделированием, должно быть меньше чем 25%, то только оценки для методик 8, 6 и 4 мы можем принять как удовлетворительные. Поэтому, либо параметры модели должны быть уточнены для остальных методик (т.е. необходимо провести серии дополнительных испытаний), либо должен быть пересмотрен подход к оценке неопределенности измерений.

Так как критерии для точности и надежности решений, а именно – совпадение стохастического и аналитического решений и не превышение рассеяния стандартного отклонения статистически моделируемой неопределенности порога в 25% от среднего значения, не выполняются, то следует определить, является ли постановка эксперимента статистически недостаточной или модель в ее математической формулировке – не универсальна.

Проверим экспериментальную постановку на универсальность. Корреляционный анализ зависимости параметров a и y0 (Таблица 7) от математических ожиданий и среднеквадратических отклонений параметров аналитической модели (Таблица 1) показывает, что на наклон линейной регрессии в большей степени влияет математическое ожидание постоянной компоненты σ_{const} и дисперсия относительной компоненты σ_{rel}, тогда как параметр *y0* обладает слабой зависимостью от параметров модели. Результаты анализа приведены в таблице (Таблица 9). Данные представлены значением коэффициента корреляции между соответствующими параметрами линейной регрессии и параметрами модели на уровне значимости α = 0,05.

Таблица 9 – Результаты корреляционного анализа зависимости параметров линейной регрессии от параметров аналитической модели

Параметры аналитической модели		Параметры линейной регрессии	
		a	*y0*
Математическое ожидание	σ_{blank}	-0,4	-0,05
	σ_{rel}	0,24	-0,7
	σ_{const}	-0,8	0,42
Стандартное отклонение	σ_{blank}	-0,018	-0,55
	σ_{rel}	-0,58	0,04
	σ_{const}	0,07	-0,6

Таким образом, модель весьма чувствительна к величине параметра σ_{const} и точности оценки параметра σ_{rel}, которые и определяют пределы применимости модели, а именно: модель применима для описания неопределенности ЭПР дозиметрии при $\sigma_{const} \leq 50$ мГр, и точность оценки σ_{rel} (стандартное отклонение) должна быть в пределах 9%.

Как видно из таблицы (Таблица 9), не обнаружено значимой корреляции между стандартными отклонениями (являющимися показателями точности оценок параметров модели) и разницей между аналитическим и статистическим описанием. Поэтому именно аналитическая модель не может быть признана универсальной. Для построения универсальной модели требуется анализ всех используемых методик с учетом их особенностей на большом наборе экспериментальных данных. Но это все равно не гарантирует, что построенная модель будет применима для вновь появляющихся ЭПР методик. Моделирование калибровочного ЭПР эксперимента в стохастической модели позволит увеличить число измерений каждого образца и количество дозовых уровней, что поможет более точно оценить показатели качества ЭПР методики и определить зависимость неопределенности оценки дозы/амплитуды от ее значения.

3.2. Универсальная стохастическая модель измерений

Использованные ранее подходы к построению модели оценки неопределенности ЭПР измерений не привели к желаемому результату. Полученные модели были применимы лишь к некоторым ЭПР методикам, поэтому было принято решение использовать стохастическое моделирование ЭПР эксперимента для оценки неопределенности измерений.

Как было отмечено выше, результатом измерений в ЭПР эксперименте является амплитуда сигнала, которая калибруется в значение дозы. В результате неопределенность оценки дозы накапливает неопределенности многих этапов эксперимента: неопределенность оценки амплитуды сигнала, ошибка калибровки и т.д. Поэтому для построения стохастической модели ЭПР эксперимента описание моделируемых источников неопределенностей необходимо начать с описания модели измерения амплитуды.

Положим, что ошибка измерения аддитивна относительно истинной амплитуды и нормально распределена. Тогда модель измеренной амплитуды будет представлена уравнением (18).

$$\hat{A} = A + \varepsilon \qquad (18)$$
$$\varepsilon = N[0, \sigma(A)]$$

Где $\hat{A}$ - измеренная амплитуда ЭПР сигнала, A – «истинная» амплитуда ЭПР сигнала, ε - ошибка измерения со стандартным отклонением, зависящим от измеряемой амплитуды.

Таким образом, измеренная амплитуда $\hat{A}$ также распределена нормально:

$$\hat{A} = N[A, \sigma(A)] \qquad (19)$$

3.2.1. Анализ экспериментальных данных

Полученная модель (19) содержит неизвестный параметр $\sigma(A)$ – зависимость стандартного отклонения амплитуды ЭПР сигнала от его значения. Для установления формы этой зависимости проведем анализ стандартных отклонений 3х повторных измерений ($\sigma(\mu)$) для всех ЭПР методик, участвовавших в калибровочном эксперименте. На Рисунок 4 представлена зависимость $\sigma(\mu)$ от среднего значения для методики ISS&ISS. Аналогичная картина прослеживается и для остальных методик.

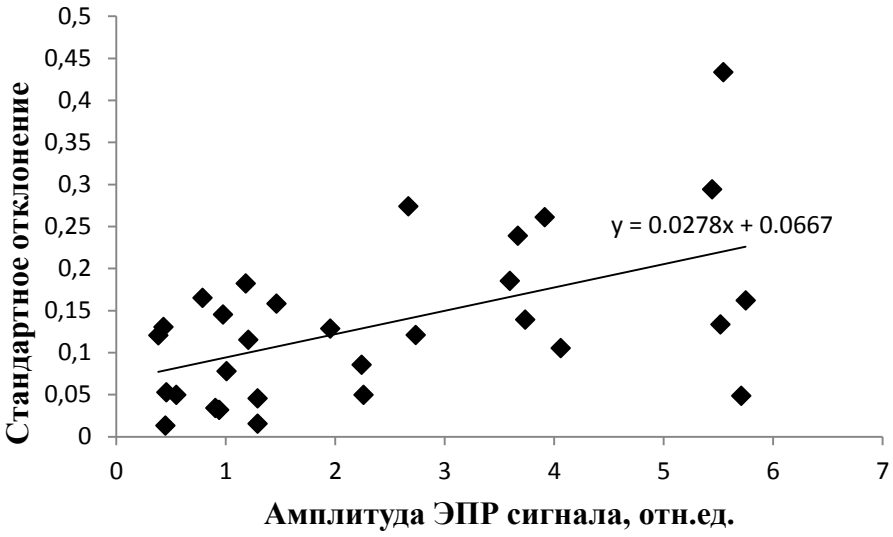

Рисунок 4 – Зависимость стандартного отклонения 3х повторных измерений от их среднего значения для ЭПР методики ISS&ISS

Из рисунка видно, что $\sigma(\mu)$ имеет слабую тенденцию к росту с ростом амплитуды сигнала. Опишем эту зависимость с помощью линейной регрессии (20), параметры которой можно оценить по данным калибровочного эксперимента.

$$\sigma(\mu) = a \cdot \mu + b \tag{20}$$

Кроме этого, необходимо учесть тот факт, что в зоне значений амплитуд ниже критического значения (A_C) нельзя достоверно отделить детектируемую амплитуду от шума прибора, поэтому исключим интервал $[0, A_C]$ из регрессионного анализа. Примем рассеяние на этом интервале постоянным и равным C (21).

$$C = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} \sigma(\mu_i) : \mu_i < A_C \tag{21}$$

Критическое значение амплитуды ЭПР сигнала (A_C) является показателем качества ЭПР методики, которая на данном этапе нам неизвестна. Более того, ее надо оценить по результатам проведенного стохастического эксперимента.

Поэтому для моделирования амплитуды сигнала заменим A_C его эмпирической оценкой - I. Значение I определим точкой, в которой нижняя граница 95% доверительного интервала линейной регрессии, построенной для зависимости стандартного отклонения 3х повторных измерений амплитуды от их среднего значения на всем диапазоне измеренных амплитуд, равна точки пересечения регрессии с осью Оу. На Рисунок 5 представлен алгоритм поиска эмпирической оценки для методики IMP&IMP. Если I определить не удается (например, в случае, когда линия регрессии почти горизонтальна), считаем, что данных недостаточно, или они сильно зашумлены, и их анализ в рамках текущей модели невозможен.

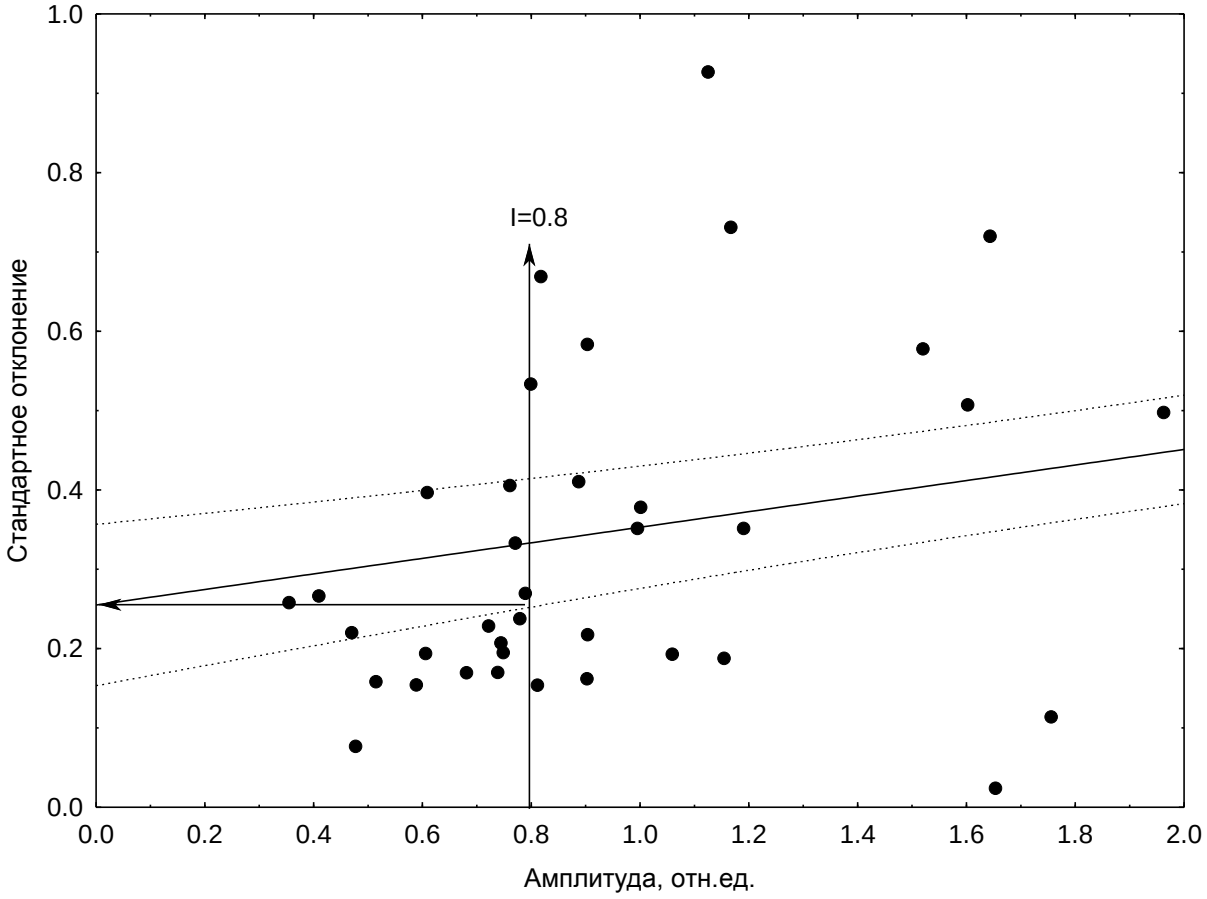

Рисунок 5 – Линейная регрессия стандартного отклонения 3х повторных измерений на их среднее значение с 95% доверительными интервалами для методики IMP&IMP

Для обеспечения непрерывности функции $\sigma(\mu)$ интервал $[0, I]$ разобьем на два равных интервала: $[0, I/2]$ и $[I/2, I]$, где на втором интервале соединим разрыв значений линейной функцией. Окончательно форма $\sigma(\mu)$ имеет кусочный вид и в общем случае определяется следующими соотношениями:

$$\sigma(\mu) = \begin{cases} C, \mu < I/2 \\ (aI + b - C) \cdot \left(\frac{2\mu}{I} - 1\right) - C, \frac{I}{2} \leq \mu < I \\ a \cdot \mu + b, \mu \geq I \end{cases} \quad (22)$$

На Рисунок 6 представлен вид функции $\sigma(\mu)$ для методики IMP&IMP, для которого эмпирическая оценка критической амплитуды (I) равна 0.8 отн.ед.

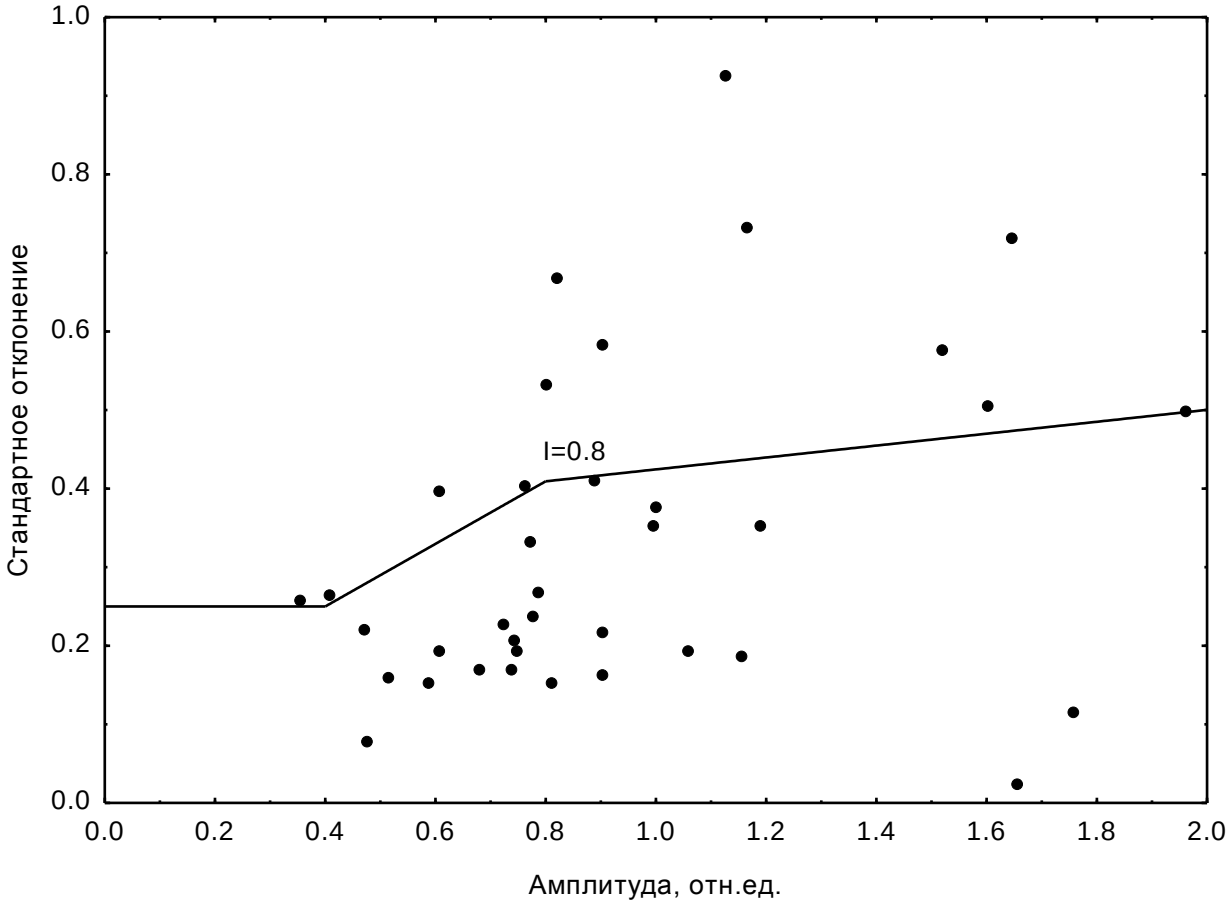

Рисунок 6 – Вид функции $\sigma(\mu)$ для методики IMP&IMP

Было установлено, что предложенный алгоритм для оценки зависимости рассеяния 3х кратных измерений амплитуды ($\sigma(\mu)$) от ее среднего значения, может быть применен ко всем изучаемым методикам.

Найденная форма $\sigma(\mu)$ позволяет моделировать среднее значение 3х кратных измерений. Более детальное моделирование калибровочного эксперимента требует имитации каждого измерения амплитуды, поэтому необходимо оценить форму $\sigma(A)$. Для установления связи $\sigma(\mu)$ и $\sigma(A)$ был проведен стохастический эксперимент, в рамках которого разыгрывалась нормальная случайная величина с известными параметрами $N(m, s)$. Экспериментально было установлено, что полученные рассеяния трех повторных розыгрышей хорошо описываются распределением Вейбулла - $\mathrm{W}(k, \lambda)$ с параметрами $k = 2$ и $\lambda = s \cdot \Gamma\left(1 + \frac{1}{2}\right)$, где $\Gamma(u)$ – гамма функция. Исходя из этого положения, значения $\sigma(\mathrm{A})$ для модели измерений (19) разыгрывались по следующей формуле:

$$\sigma(A) = \sqrt{\ln(1 - r)}\,\frac{\sigma(\mu)}{\Gamma\left(1 + \frac{1}{2}\right)} \tag{23}$$

Где $r \in U(0,1)$ – равномерно распределенная случайная величина.

Таким образом, нам известны все параметры модели (19) для стохастической имитации каждого ЭПР измерения в калибровочном эксперименте. Далее полученное значение амплитуды ЭПР сигнала калибруется в значение дозы. Как уже было сказано, калибровка тоже привносит неопределенность в конечный результат, и, потому, этот этап эксперимента тоже необходимо моделировать.

3.2.2. Калибровка измерений

Для перевода значения измеренной амплитуды ЭПР сигнала ($\hat{A}$) в значение дозы ($\widehat{D}$) используют калибровочную кривую. Калибровочная кривая строится по результатам калибровочного эксперимента с помощью метода наименьших квадратов. Отмечено выше, что на достаточно широком диапазоне доз калибровочная кривая имеет линейную форму:

$$\hat{A} = \alpha\widehat{D} + \beta \tag{24}$$

Используя экспериментальные данные оцениваем параметры линейной регрессии (α, β), а также их погрешности $(\varepsilon_\alpha, \varepsilon_\beta)$. Полученные погрешности необходимо учесть в стохастической модели при калибровке смоделированной амплитуды ЭПР сигнала, поэтому параметры калибровочной кривой разыгрываются как нормальная случайная величина согласно полученным оценкам. Так как параметры калибровочной кривой зависимы между собой, для их розыгрыша получаем следующие формулы:

$$\xi_\beta = N[\beta, \varepsilon_\beta]$$
$$\xi_\alpha = \frac{\beta - \xi_\beta}{D_{midle}} + 2\alpha - N[\alpha, \varepsilon_\alpha] \tag{25}$$

где D_{midle} - середина интервала измеренного диапазона доз.

Моделируемая доза $\widehat{D}$ задается следующим соотношением:

$$\widehat{D} = \frac{\hat{A} - \xi_\beta}{\xi_\alpha} \tag{26}$$

Полученные уравнения по моделированию амплитуды ЭПР сигнала и калибровке ее в значение дозы позволяют оценить показатели качества ЭПР методики.

3.2.3. Оценка суммарной неопределенности измерения дозы

Для оценки суммарной неопределенности необходимо учесть различную индивидуальную чувствительность эмали зубов к ионизирующему облучению, которая варьируется не только от человека к человеку, но и зависит от способа приготовления образца. Индивидуальная чувствительность влияет на количество CO_2^- радикалов, которые будут индуцированы внешним облучением в эмали зуба. В отличие от погрешности измерения самого прибора погрешность, привносимая этим фактором, не может быть минимизирована. Вариабельность радиационной чувствительности учитывается розыгрышем коэффициента α калибровочной кривой как нормальной случайной величины, после того, как была учтена статистическая ошибка этого коэффициента при калибровке (27).

$$\xi_\alpha = N[\xi_\alpha, k_{sens} * \xi_\alpha] \quad (27)$$

Где k_{sens} - значение индивидуальной радиационной чувствительности, задаваемое экспериментатором.

Как было ранее отмечено, значение коэффициента может быть различно для разных популяций, в данной работе вариабельность радиационной чувствительности для сельских жителей Уральского региона оценена в 16%.

Кроме того, в калибровочном эксперименте образец облучают некой известной дозой, которую потом измеряют методом ЭПР, но истинная доза остается неизвестной, т.к. неизвестна фоновая составляющая дозы, которую уже содержал образец до облучения. Вариабельность «истинной» дозы обеспечивается розыгрышем дозы дооблучения согласно принятому положению относительно формы распределения фоновых доз в изучаемой популяции относительно их математического ожидания (28)(43).

$$\widehat{D} = \widehat{D} + \left(\widehat{D}_{bg} - M\left(\widehat{D}_{bg}\right)\right) \quad (28)$$

Где $\widehat{D}_{bg}$ - разыгранное значение фона,

$M\left(\widehat{D}_{bg}\right)$ – математическое ожидание фонового распределения доз.

Способ построения модели розыгрыша фоновой дозы описан в следующей главе данной работы.

Моделирование амплитуды измеряемого ЭПР сигнала и соответствующей ей дозы осуществляется с помощью двумерного метода Монте-Карло и схематично представлено на Рисунок 7.

Рисунок 7 – Схема моделирования амплитуды и дозы для оценки суммарной неопределенности

Суммируя предложенные подходы для моделирования различных источников неопределенности измерений в ЭПР дозиметрии, полученную стохастическую модель можно схематично изобразить на Рисунок 8.

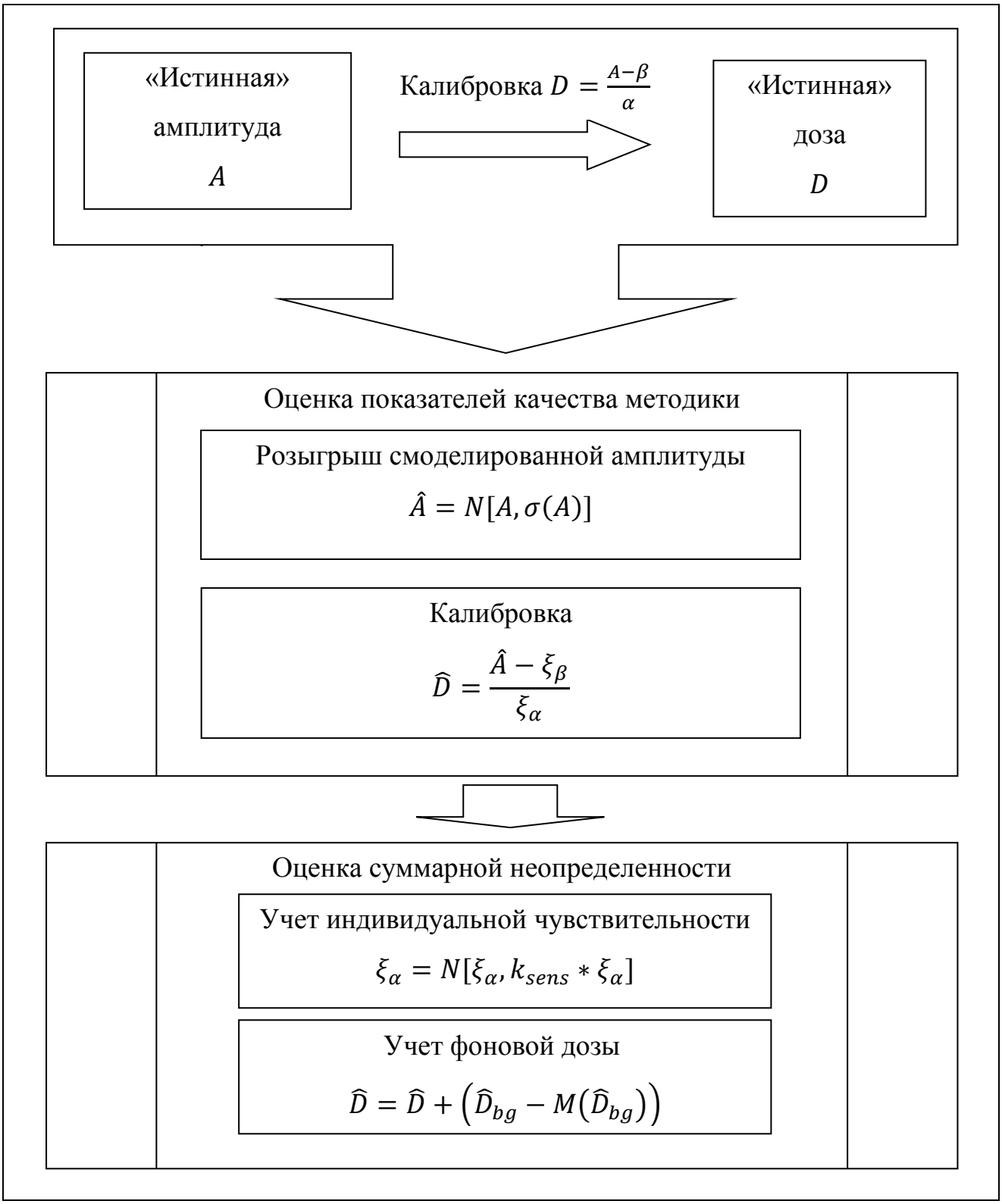

Рисунок 8 – Схема стохастической модели

3.2.4. Описание компьютерной программы для стохастической имитации калибровочного эксперимента

Для упрощения совместной работы лабораторий по оценке показателей качества их методик и оценке пределов индивидуализации схема предложенной стохастической модели (Рисунок 8) была реализована в компьютерной программе. Краткое описание программы было опубликовано в совместной работе [98]. Для проведения стохастического эксперимента необходимо моделировать равномерную и нормальную случайную величину. Равномерная случайная величина моделировалась с помощью генератора случайных чисел, встроенного в среду разработки C++ Builder 6 из пакета stdlib.h. Для моделирования нормальной случайной величины использовалось преобразование Бокса-Мюллера по алгоритму, представленному на Рисунок 9.

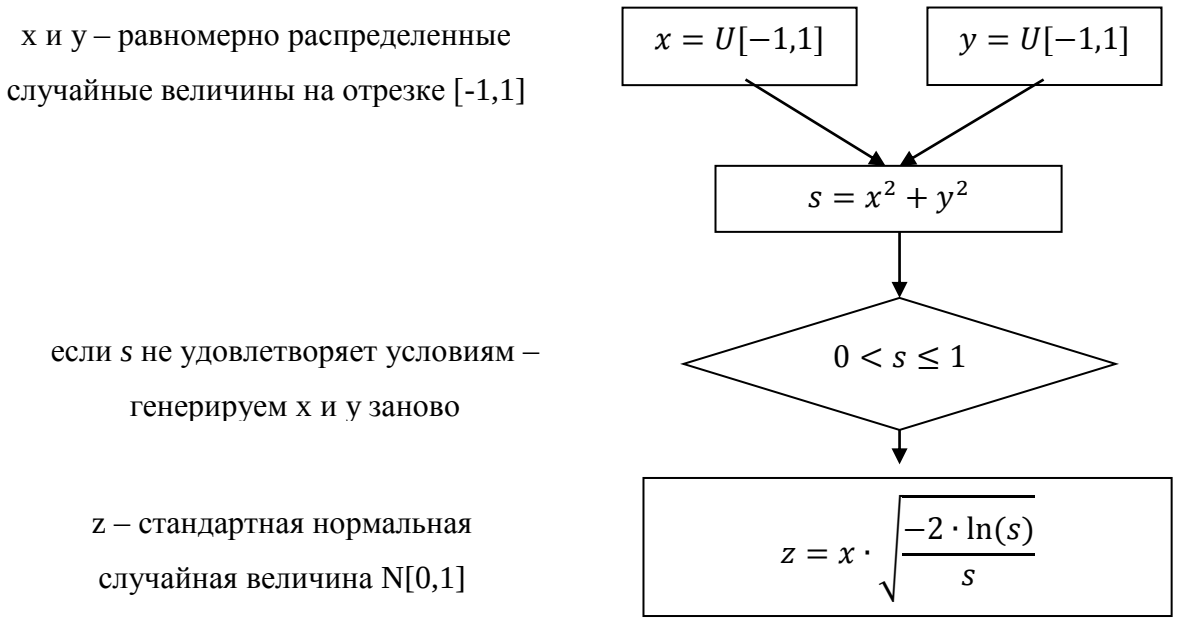

Рисунок 9 – Схема моделирования нормальной случайной величины

Переход от стандартной к общей форме нормальной случайной величины $\xi = N[m, s]$ осуществляется по формуле (29).

$$\xi = s \cdot z + m \tag{29}$$

3.2.5. Входные данные

Данные калибровочного эксперимента, находящиеся в текстовом файле должны быть представлены в табличном виде и удовлетворять формату (Таблица 10):

Таблица 10 – Формат входных данных

N+2				
Доза, мГр	Масса, мг	A_1	…	A_N

Где A_i – измеренная амплитуда ЭПР сигнала.

3.2.6. Главное окно программы

После выбора файла с данными калибровочного эксперимента главное окно программы выглядит как на Рисунок 10.

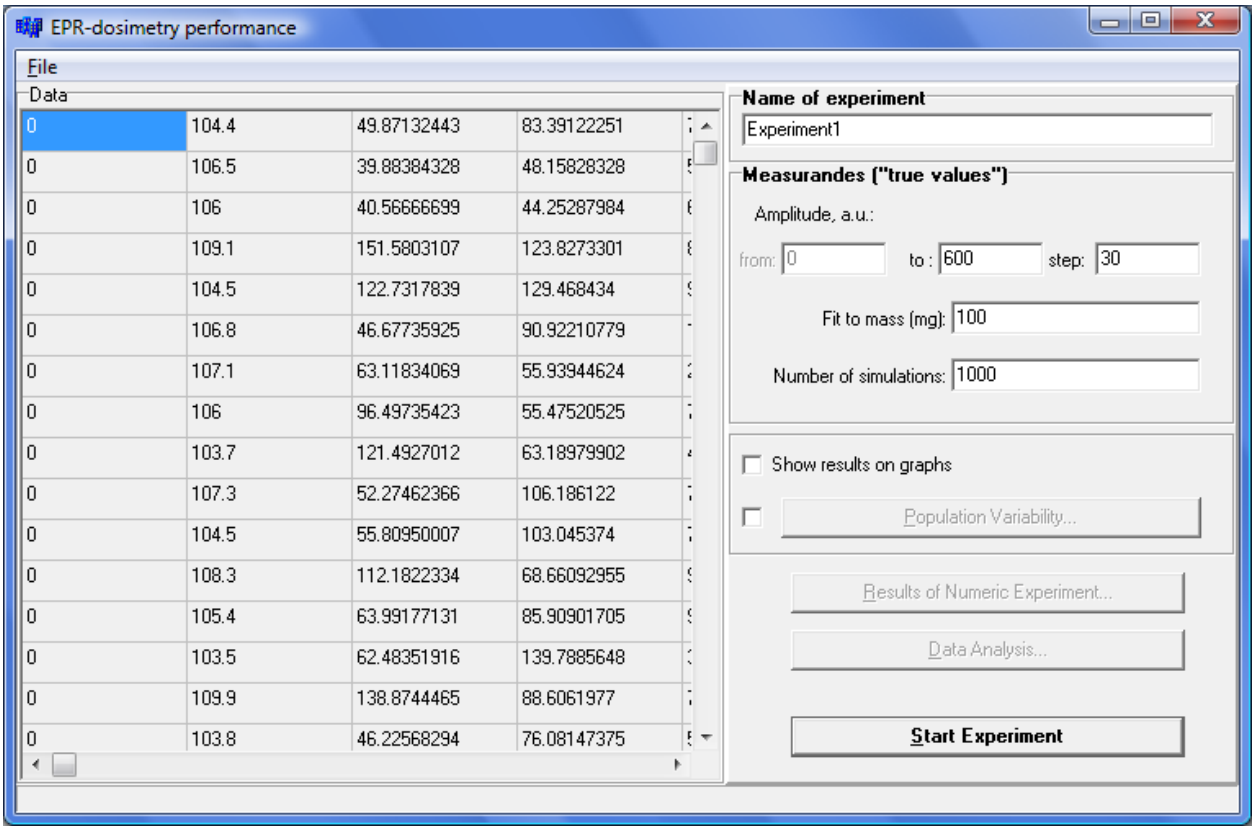

Рисунок 10 – Главное окно программы

Параметры стохастического ЭПР эксперимента:

1. Name of experiment – название эксперимента.

2. Ampitude – диапазон моделируемых амплитуд: от, до и шаг.
3. Fit to mass – масса образца, к которой нужно привести выходные данные (по-умолчанию - 100 мг).
4. Number of simulations – количество розыгрышей амплитуды ЭПР сигнала на каждом шаге моделирования (по-умолчанию – 1000 розыгрышей).
5. Show results on graphs – опция для показа смоделированных амплитуд/доз на графике.
6. Population Variability – опция для включения учета неопределенностей индивидуальной чувствительности эмали к ионизирующему облучению и моделированию неизвестной компоненты от фонового облучения необходимых для расчета предела индивидуализации.
7. Results of Numeric Experiment – открывает окно с графиками смоделированных амплитуд/доз после проведения эксперимента, если была включена соответствующая опция до его начала.
8. Data Analysis – открывает окно с результатами эксперимента.
9. Start Experiment – кнопка начала эксперимента.

После ввода необходимых параметров можно провести эксперимент, нажав на кнопку старта, и на главной форме программы будут доступны кнопки для показа результатов эксперимента.

3.2.7. Смоделированные амплитуды и дозы

Окно с графическим представлением результатов моделирования позволяет посмотреть различные графики с возможностью экспорта данных графика в файл для дальнейшего анализа, необходимого экспериментатору:

1. Смоделированные амплитуды ЭПР сигнала для каждого шага «истинного» значения (Рисунок 11).

2. Смоделированные дозы и амплитуды вместе с калибровочной кривой, построенной по экспериментальным данным калибровочного эксперимента (Рисунок 12).
3. Смоделированные дозы для каждого шага «истинного» значения амплитуды ЭПР сигнала (Рисунок 13).
4. Смоделированные дозы для каждого смоделированного уровня дооблучения образцов (Рисунок 14).

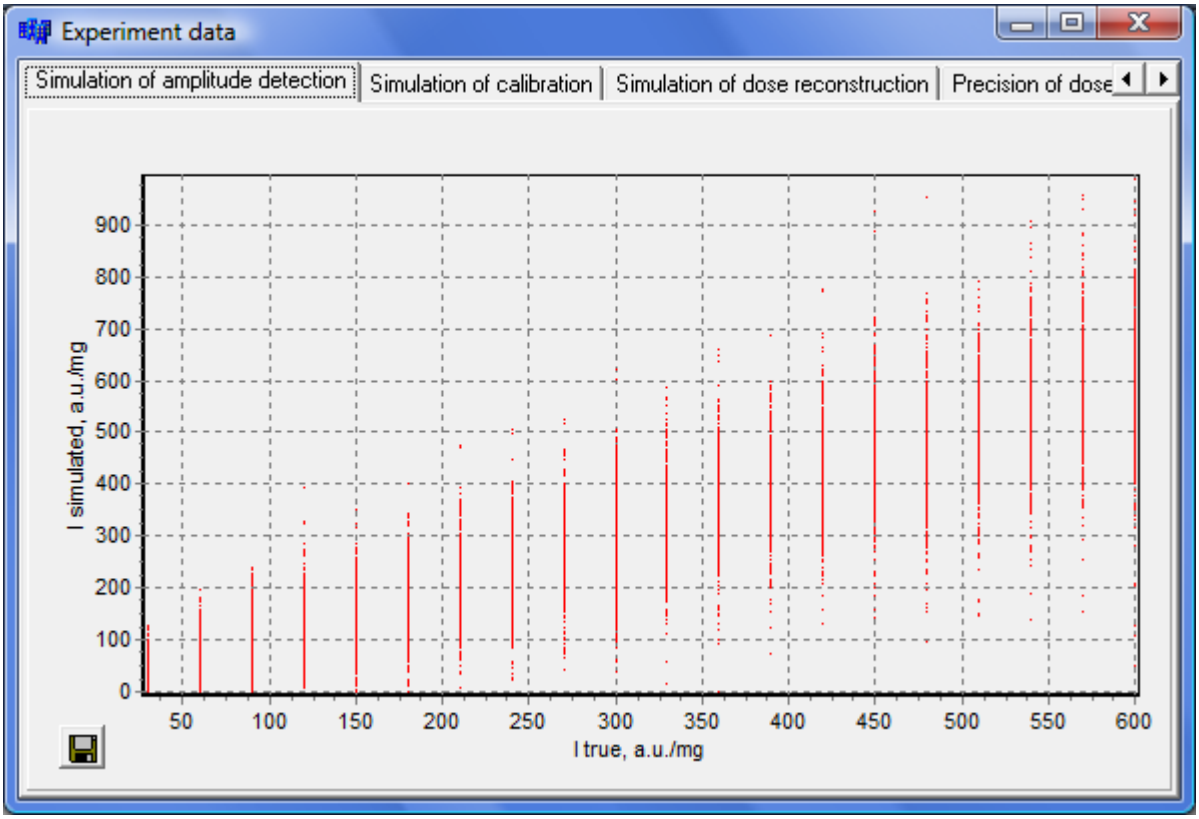

Рисунок 11 – Смоделированные амплитуды ЭПР сигнала на шаге «истинного» значения

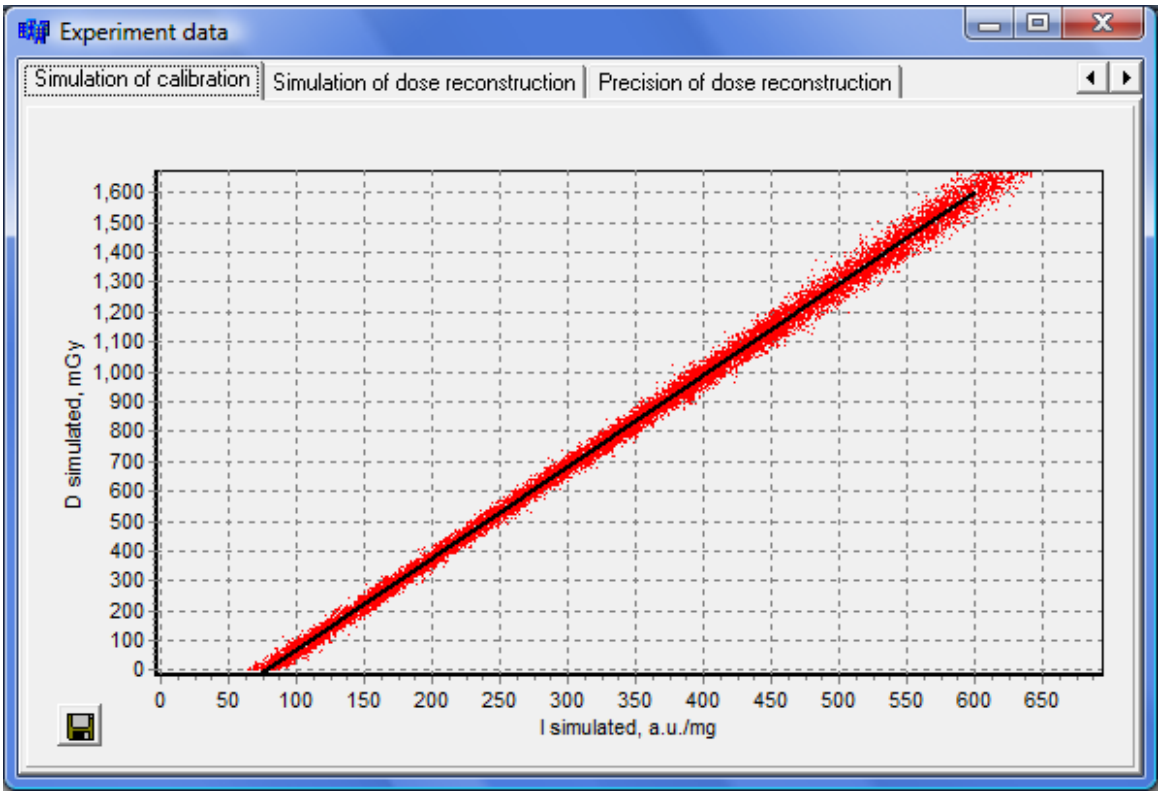

Рисунок 12 – Смоделированные дозы и амплитуды с калибровочной кривой

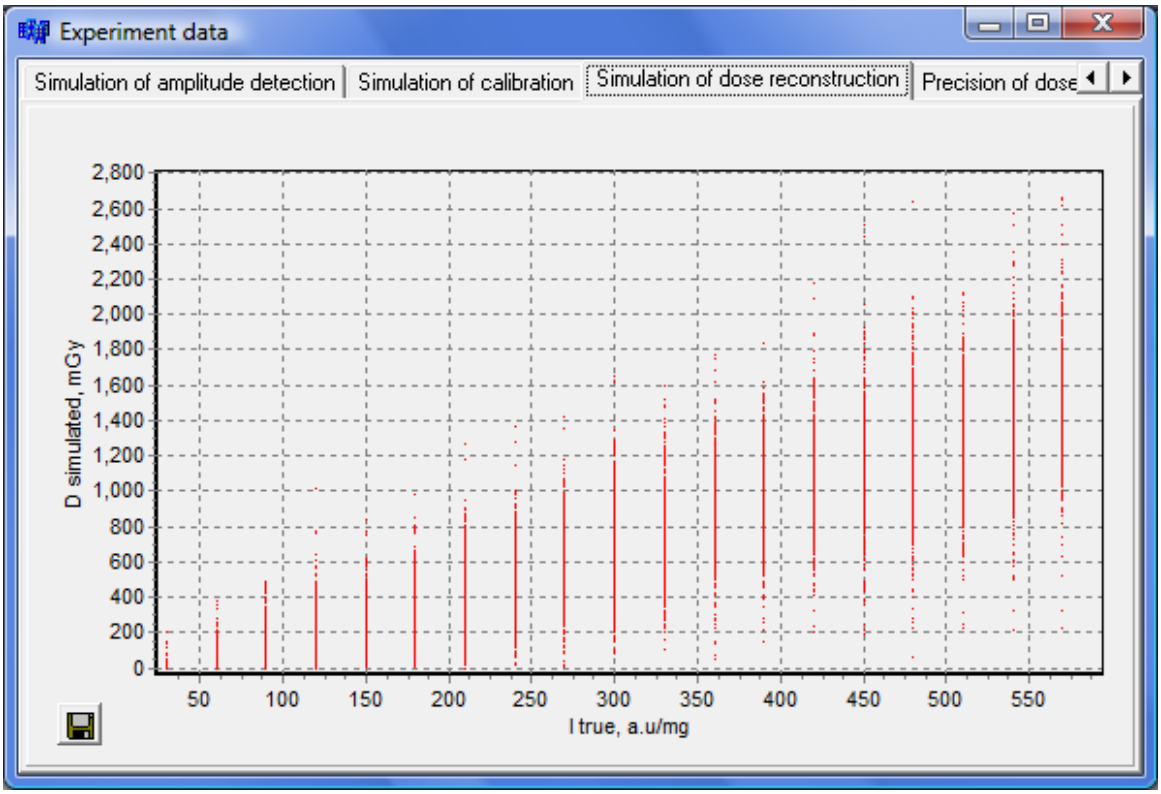

Рисунок 13 – Смоделированная доза на шаге «истинного» значения амплитуды ЭПР сигнала

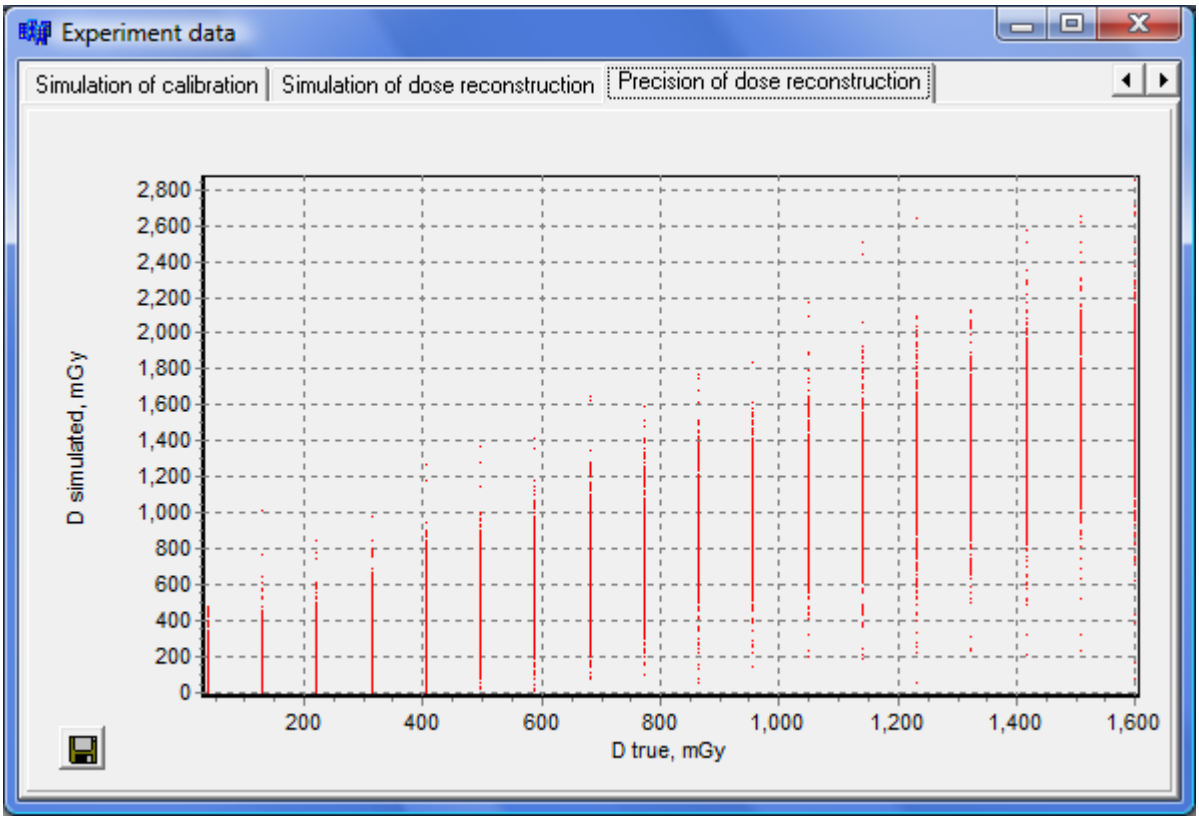

Рисунок 14 – Смоделированная доза для каждого моделируемого уровня дооблучения

3.2.8. Анализ смоделированных данных

В результате проведения стохастического эксперимента для каждого шага моделируемой («истинной») амплитуды получаем набор смоделированных амплитуд:

$$A_i \xrightarrow{modeling} \{A_i^j\} \tag{30}$$

Где i - i-ый шаг эксперимента, $j = 0, \dots, N$ – количество смоделированных амплитуд.

С помощью калибровочной кривой получаем моделируемые дозы:

$$A_i \xrightarrow{calibration} D_i \tag{31}$$

Калибровка амплитуды в дозу на данном этапе осуществляется без учета погрешностей оценок параметров калибровочной кривой. Если требуется учет неизвестной фоновой составляющей, то к полученной дозе прибавляется отклонение разыгранного значения фона от его среднего значения.

$$A_i \xrightarrow{calibration} D_i$$
$$D_i = D_i + (D_{bg} - Mean_{bg}) \quad (32)$$

Где D_{bg} - разыгранное значение фоновой дозы, $Mean_{bg}$ – среднее значение фоновых доз.

Оценка предела детектирования (LDA) и критического значения (AC) амплитуды проводится на основе смоделированных данных ($A_i \leftrightarrow \{A_i^j\}$) алгоритмом, представленном на Рисунок 15.

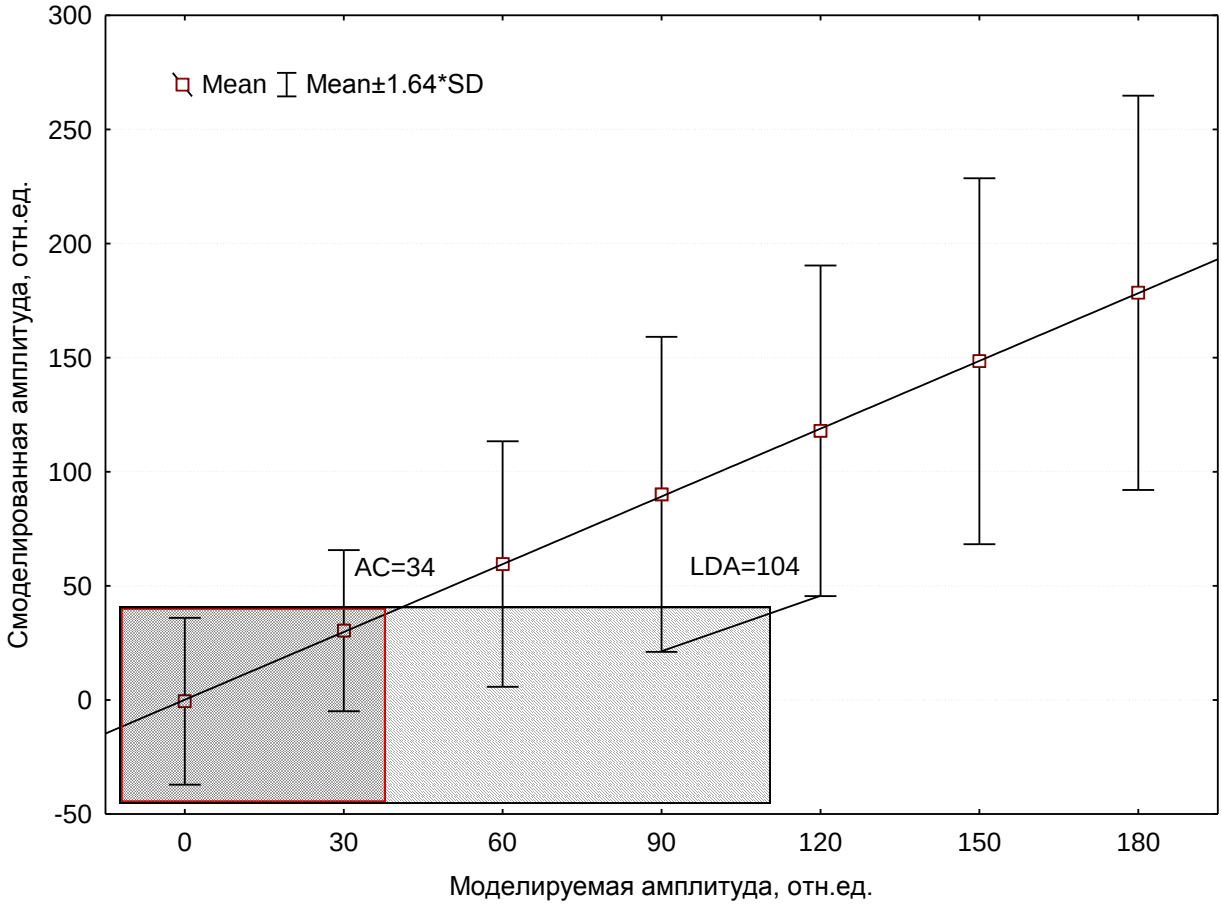

Рисунок 15 – Критическое значение (AC) и предел детектирования (LDA) амплитуды ЭПР сигнала

Для поиска критического значения амплитуды ищем моделируемую амплитуду, где значение линейной регрессии совпадает со значением 95ой процентили значений необлученных образцов, т.е. когда моделируемая амплитуда равна 0. Тогда для всех амплитуд меньше AC с 95% вероятностью будет выполняться

гипотеза «образец не был облучен». Предел детектирования ищем в точке, где линия, соединяющая 5ые процентили, будет равна 95ой процентили значений необлученных образцов. В этом случае для всех амплитуд выше LDA с 95% вероятностью будет выполняться гипотеза «образец был облучен». Оценка пределов детектирования (LDD) и критического значения (DC) доз ищется точно также, но на данных $D_i \leftrightarrow \{D_i^j\}$.

Важным результатом работы программы является вывод зависимости неопределенности измерения амплитуды и дозы от ее значения. Неопределенность оценки – стандартное отклонение, посчитанное по набору $\{\mathrm{A}_\mathrm{i}^\mathrm{j}\}$.($\{\mathrm{D}_\mathrm{i}^\mathrm{j}\}$) для каждого шага моделирования $\mathrm{A_i}$ ($\mathrm{D_i}$). Результат представлен в виде точечного графика, данные которого доступны экспериментатору для дальнейшего анализа. Примеры графиков для двух разных методов представлены на Рисунок 16. Сгладив полученные точки некоторой функцией, можно получить функцию для оценки неопределенности для любой дозы. Эти графики вместе с показателями качества метода и другими результатами выводятся на форме отчета и доступны для печати. Пример отчета по результатам проведенного стохастического эксперимента изображен на Рисунок 17.

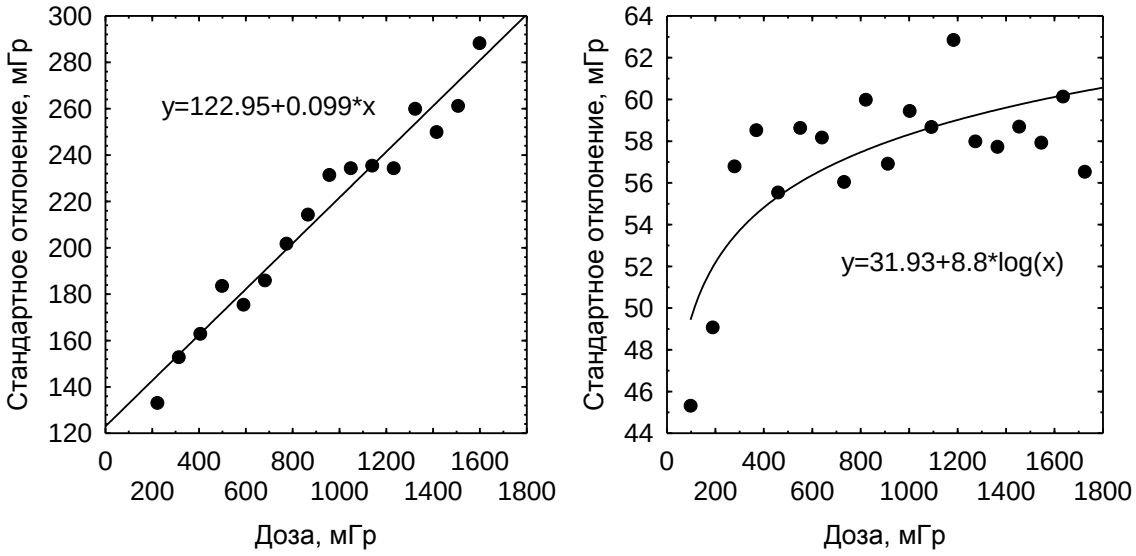

Рисунок 16 – Неопределенность оценки дозы на примере двух различных методов

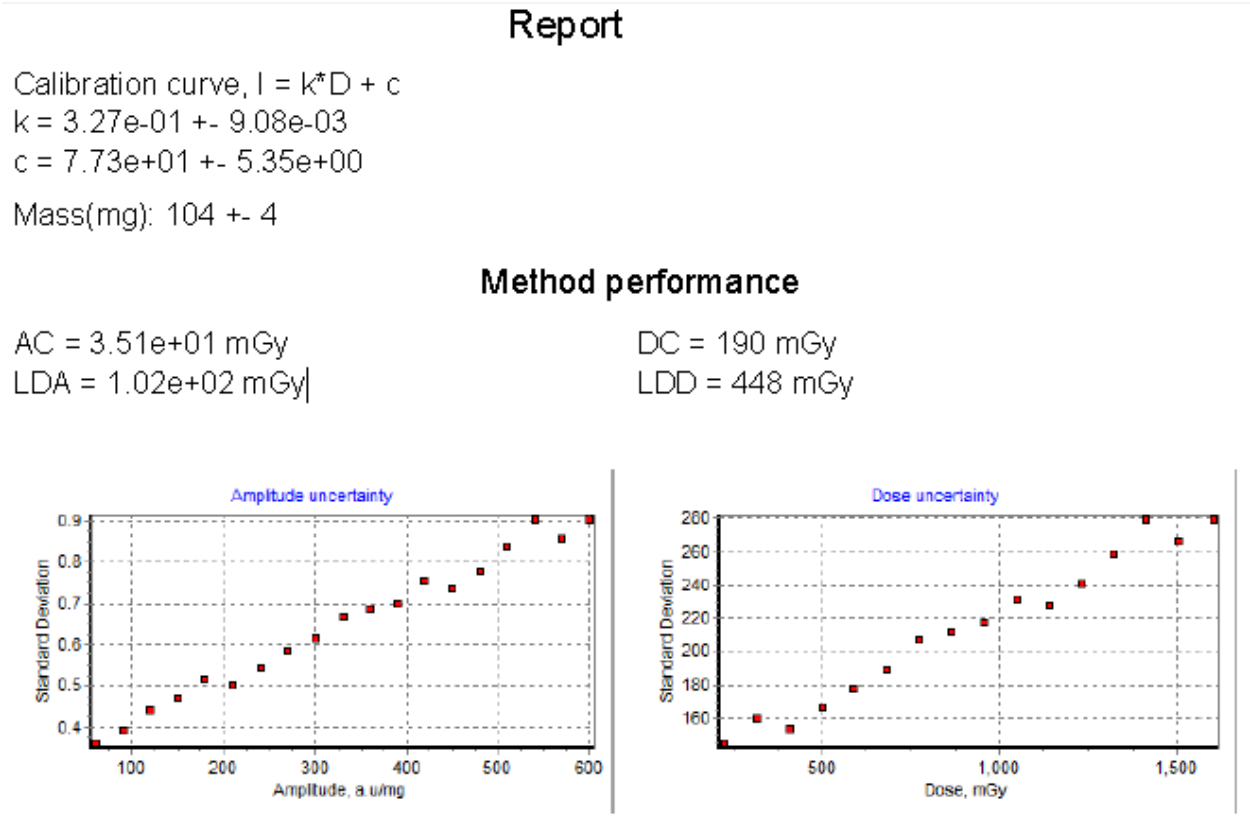

Рисунок 17 – Пример финального отчета с результатами моделирования ЭПР эксперимента

С помощью реализованной компьютерной программы по стохастической имитации ЭПР эксперимента оценены показатели качества анализируемых методик ЭПР дозиметрии, которые представлены в таблице ниже (Таблица 11).

Таблица 11 – Показатели качества ЭПР методик

ЭПР методика (приготовление/измерение)	AC, отн.ед.	LDA, отн.ед.	DC, мГр	LDD, мГр
IMP/IMP	35	102	190	448
IMP/ISS	25	52	91	257
IMP/GSF	85	253	221	635
ISS/IMP	68	140	233	479
ISS/ISS	16	30	55	118
ISS/GSF	40	80	97	205
GSF/IMP	29	59	102	231
GSF/ISS	22	45	77	155
GSF/GSF	19	37	48	94

Полученные результаты хорошо согласуются с результатами, найденными в других исследованиях, которые представлены в следующей таблице (Таблица 12) [60].

Таблица 12 – Показатели качества ЭПР методик, полученные в других исследованиях

ЭПР методика (приготовление/измерение)	DC, мГр	LDD, мГр
IMP/IMP	157	368
IMP/ISS	104	211
IMP/GSF	242	552
ISS/IMP	165	455
ISS/ISS	56	188
ISS/GSF	63	171
GSF/IMP	77	247
GSF/ISS	88	201
GSF/GSF	22	101

Так, например, стохастическая модель дает самые высокие значения пределов детектирования дозы для методик IMP/GSF и ISS/IMP, которые также имели самые высокие значения предела детектирования в других

исследованиях. Аналогично, методикой с самым низким пределом детектирования, является методика GSF/GSF.

Кроме различных показателей качества также была оценена неопределенность оценки дозы для всех исследуемых методик – Таблица 13. Найденные функции неопределенности были оценены по результатам стохастического эксперимента. Экспериментатор может использовать любой свой метод сглаживания полученных результатов.

Таблица 13 – Неопределенность оценки дозы в ЭПР методиках

ЭПР методика (приготовление/измерение)	Неопределенность оценки дозы - U(D), мГр
IMP/IMP	160
IMP/ISS	$94 + 12 * (1 - e^{-0.003} * D)$
IMP/GSF	270
ISS/IMP	$80 + 11.44 * Log(D)$
ISS/ISS	$32.2 + 0.03 * D$
ISS/GSF	$\begin{cases} 52.3 + 0.1 * D - 0.0001 * D^2 + 4.5 * 10^{-8} * D^3, D \leq 700 \\ 82, D > 700 \end{cases}$
GSF/IMP	$56.7 + 0.09 * D$
GSF/ISS	$31 + 28 * (1 - e^{-0.006} * D)$
GSF/GSF	$31 + \frac{16}{1 + e^{\frac{D-304}{42}}}$

Согласно схеме стохастической модели, представленной на Рисунок 8, для оценки суммарной неопределенности необходим розыгрыш фоновой составляющей дозы. Определение формы и оценка параметров распределения фоновых доз в изучаемой популяции описаны в следующей главе.

3.3. Заключение к главе

Было показано, что не существует универсальной аналитической модели для оценки неопределенности ЭПР измерений, а также для оценки показателей качества различных методик. Стохастическое моделирование калибровочного ЭПР эксперимента с помощью метода Монте-Карло позволило разработать

универсальную схему с описанием всех источников неопределенностей, которая может быть применена к различным ЭПР методикам. Используя разработанную схему, были оценены показатели качества этих методик. Критические значения амплитуд ЭПР сигнала (AC) находятся в интервале 16-85 отн.ед., а пределы детектирования (LDA) – 30-253 отн.ед. Критические значения доз (DC) – 48-233 мГр, и пределы детектирования (LDD) – в интервале от 94 мГр до 635 мГр для методик GSF/GSF и IMP/GSF соответственно.

С помощью реализованного программного комплекса можно определить показатели качества любой ЭПР методики, а унификация и повсеместное использование предложенной модели позволит сравнивать показатели качества методик различных лабораторий. Кроме показателей качества программный комплекс помогает определить неопределенность измерений амплитуды и дозы в зависимости от полученных значений.

Программа была зарегистрирована в государственном реестре программ ЭВМ (Приложение 1), внедрена в исследовательские процедуры в Уральском научно-практическом центре радиационной медицины и выложена в свободный доступ на сайте [99].

Глава 4. Разделение фоновых и техногенных доз

Как уже было отмечено выше, измеряемые в калибровочном эксперименте образцы, уже имели некоторую фоновую дозу до проведения эксперимента, которая была накоплена в течение всей жизни человека от естественных источников облучения. При оценке дозы, полученной в результате изучаемого инцидента, эту составляющую необходимо учесть. Сложность оценки фоновой составляющей дозы связана со многими факторами: вариабельность фонового распределения доз среди различных популяций, сопоставимость уровня фоновых доз с пределом детектирования используемой ЭПР методики. Учитывая эти сложности, для решения задачи разделения фоновых и надфоновых доз необходимы популяционные исследования, а также оценка и уточнение показателей качества различных ЭПР методик. В данной работе приведены исследования и оценка распределения фоновых доз для сельских жителей Южного Урала.

4.1. Анализ экспериментальных данных фоновых измерений

Фоновые измерения были проведены для резцов, моляров и премоляров. Уровни облучения резцов и моляров отличаются, из-за ультрафиолетового излучения, которое привносит дополнительную составляющую в фоновую дозу. Кроме того, сами образцы эмали резцов имеют малую массу в виду недостаточности материала. Учитывая эти факторы, измерения резцов и моляров нельзя объединять в один пул и для минимизации источников неопределенности исключим измерения резцов из анализа.

Таким образом, в анализе использовались измерения данные полученные с помощью шести ЭПР методик тремя лабораториями: IMP (Институт Физики Металлов, Екатеринбург, Россия), HMGU (Мюнхен, Германия) и ISS (Рим, Италия) при измерении зубов одной и той же популяции. Показатели качества этих методик, были оценены с помощью разработанной стохастической модели (Таблица 14).

Таблица 14 – Описание имеющихся фоновых измерений

Номер методики	Лаборатория	Годы измерения	DC, мГр	LDD, мГр	Количество зубов
1	IMP	2000- 2001	110	196	50
2	IMP	2002	100	180	12
3	IMP	2003	112	206	25
4	HMGU	2002	-	-	18
5	HMGU	2007-2009	58	100	67
6	ISS	2005-2008	70	120	27
Всего					199

Поскольку доноры принадлежали к немониторированной популяции, то невозможно исключить у некоторых из них возможность каких-либо контактов в прошлом с источниками излучения (например, профессиональных, во время службы в армии, либо во время посещения друзей и родственников, проживающих на загрязненных территориях и т.п.). Для более точного построения распределения фоновых доз в популяции необходимо исключить из анализа данные, которые заведомо не могут быть отнесены к фоновым дозам. Поэтому, из анализа были исключены результаты измерений четырех из 167 доноров (2.3%). Измеренные у них дозы (560, 790, 3040 и 3290 мГр) заметно превышают 95% уровень измеренных значений.

На Рисунок 18 показано сопоставление результатов измерений, выполненных разными методиками.

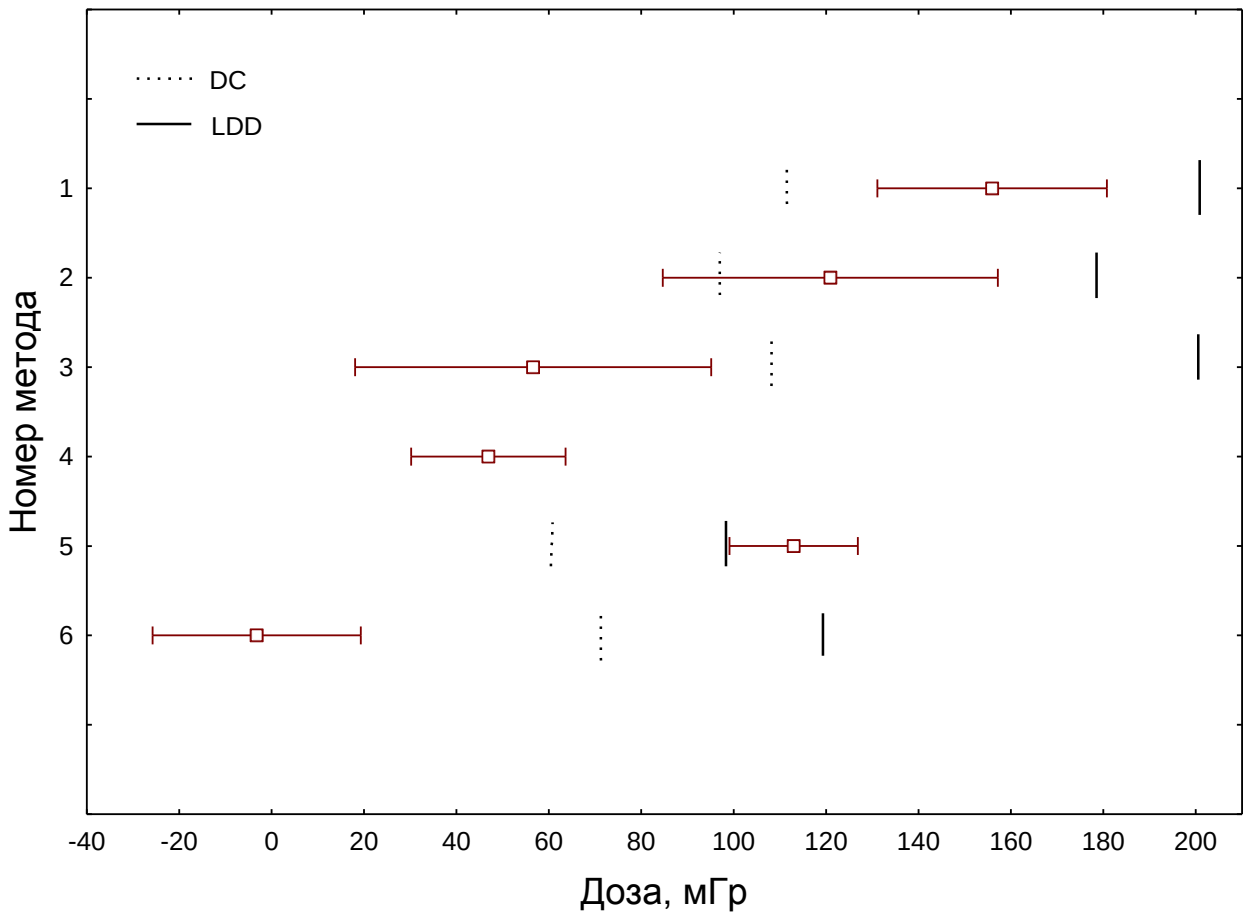

Рисунок 18 – Распределения фоновых доз, измеренных разными методиками. Прямоугольники – среднее значение, усы – 90% доверительный интервал. Штрих-линии отмечают для каждой методики показатели качества: критическая доза (DC) и предел детектирования дозы (LDD)

Как видно из рисунка, результаты, полученные разными методиками, отличаются. С целью проверки однородности использованных в данной работе выборок был использован критерий Манна-Уитни (Mann and Whitney, 1947), который на уровне значимости $\alpha = 0.05$ подтвердил неоднородность выборок. На основании этого было сделано заключение о невозможности совместной обработки результатов измерений, сделанных в разных лабораториях различными методиками ЭПР дозиметрии. Также отметим, что каждая из методик имеет разную долю ЭПР измерений, превышающих предел детектирования, которые могут быть интерпретированы как доза

ионизирующего излучения. Среднее значение полученных измерений находится выше предела детектирования только у данных, полученных с помощью 5ой методики, а остальные данные – сильно зашумлены.

4.2. Модель измерений

Для решения задачи по выделению распределения фоновых доз модель измерений была положена согласно уравнению:

$$\widehat{D} = D + E \tag{33}$$

Здесь: $\widehat{D}$ – измеренное значение дозы, D – измеряемое значение дозы, E – ошибка измерения. В исследовании использовались следующие предположения:

- распределение фоновых доз логнормально с неизвестными параметрами m и s ($D = LogN[m, s]$);
- ошибка измерения имеет нормальное распределение с неизвестным средним C, которое зависит от ЭПР методики, и, зависящим от дозы, стандартным отклонением $g(D)$.

Таким образом, окончательная модель измерений принимает вид:

$$\widehat{D}^j = LogN[m, s] + N[C_j, g_j(D)] \tag{34}$$

Где $j = 1,2, \dots ,6$ – номер ЭПР метода.

Неопределенность оценки дозы $g(D)$ можно оценить с помощью разработанной стохастической модели. Построение функции неопределенности $g(D)$ основано на значениях $(\sigma(D), D)$, полученных в результате проведения стохастического эксперимента. Этот подход дает экспериментатору свободу в выборе формы функции неопределенности оцени дозы $g(D)$, сглаживающей полученные данные.

4.3. Оценивание параметров модели

Неизвестные параметры m и s в уравнении (34) одинаковы для всех методов, т.к. в измерениях используются образцы, полученные от одной и той

же популяции. В рамках каждого метода набор неизвестных параметров m_j, s_j и C_j определяются с помощью метода моментов. Используемый метод был предложен и описан в работе [100]. Заменяя истинные моменты их выборочными аналогами, рассчитанными по экспериментальным данным, получена следующая система их 3х уравнений:

$$\begin{cases} M_1(m, s, C_j) = \widehat{M}_1 \\ M_2(m, s, C_j) = \widehat{M}_2 \\ M_3(m, s, C_j) = \widehat{M}_3 \end{cases} \tag{35}$$

Где M_i – теоретический начальный момент случайной величины $\widehat{D}^j$, наблюдаемой в эксперименте, $\widehat{M}_i$ – его эмпирический аналог.

Выборочный момент i-ого порядка определяется следующим образом:

$$\widehat{M}_i = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} \widehat{D}_i^j \tag{36}$$

Момент порядка p логнормальной случайной величины считаются по формуле:

$$M\left[LogN^p[m, s]\right] = e^{pm+\frac{p^2 s^2}{2}} \tag{37}$$

Исходя из этого, получаем систему из 3х уравнений:

$$\begin{cases} e^{m+\frac{s^2}{2}} + C_j = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} \widehat{D}_i \\ e^{2m+2s^2} + C_j^2 + 2C_j e^{m+\frac{s^2}{2}} + \int_0^\infty g^2(t) f_U(t)dt = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} \widehat{D}_i^2 \\ e^{3m+\frac{9s^2}{2}} + C_j^3 + 3C_j^2 e^{m+\frac{s^2}{2}} + 3C_j e^{2m+2s^2} + 3C_j \int_0^\infty g^2(t) f_U(t)dt + 3\int_0^\infty t \cdot g^2(t) f_U(t)dt = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} \widehat{D}_i^3 \end{cases} \tag{38}$$

Где $f_U(t) = \frac{1}{ts\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\ln(t)-m)^2}{2s^2}}$ – плотность логнормального распределения.

Система решалась численного с помощью математического пакета «Mathematica». Заметим, что эта система не всегда может иметь решения.

4.4. Усреднение индивидуальных решений

Для тех методов, которые решаются системой (38), находим параметры $\widehat{m}_j$ и $\hat{s}_j$, которые являются индивидуальными оценками неизвестных нам

параметров m и s. Найдем общее решение с помощью взвешенных оценок $\widehat{m}$ и $\hat{s}$.

Определим взвешенное решение исходя из следующих положений:

$$\begin{cases} m \approx \widehat{m} = \sum_j w_j \widehat{m}_j\,, \qquad s^2 \approx \hat{s}^2 = \sum_j v_j \hat{s}_j^2 \\ \sum_j w_j = \sum_j v_j = 1, \qquad V(\widehat{m}) \to min, \qquad V(\hat{s}^2) \to min \end{cases} \tag{39}$$

Где $V(\xi)$ - дисперсия случайной величины ξ.

Этим условиям удовлетворяет единственное решение:

$$\widehat{m} = \frac{1}{\sum_i \frac{1}{V(\widehat{m}_i)}} \sum_j \frac{\widehat{m}_j}{V(\widehat{m}_j)}, \qquad \hat{s}^2 = \frac{1}{\sum_i \frac{1}{V({\hat{s}_j}^2)}} \sum_j \frac{{\hat{s}_j}^2}{V({\hat{s}_j}^2)} \tag{40}$$

4.5. Точность и надежность оценивания

Вариабельность параметров модели складывается из вариабельности, привносимой процедурой численного решения системы, и вариабельности оценки параметров правой части системы, обусловленной их экспериментальным характером.

Точность численного метода решения системы (38), применительно к конкретной ЭПР методике j, оценим с помощью решения ($\widehat{m}_j$, $\hat{s}_j$, $\hat{C}_j$). Подставим это решение в левую часть системы (38) и найдем точные значения правых частей уравнений системы. Решая систему с помощью численного метода для точных значений правой части, находим новые оценки ($\widetilde{m}_j$, $\tilde{s}_j$, $\tilde{C}_j$) параметров модели фонового распределения доз. Тогда можно оценить точность численного метода решения для каждой конкретной ЭПР методики с помощью следующей формулы:

$$\Delta_j = \left(\left|\widetilde{m}_j - \widehat{m}_j\right|, \left|\tilde{s}_j - \hat{s}_j\right|, \left|\tilde{C}_j - \hat{C}_j\right|\right) \tag{41}$$

Полученной оценки точности численного метода решения недостаточно для оценки вариабельности параметров модели, обусловленной вариабельностью правых частей системы.

Обозначим вектор возмущений правой части через $\varepsilon = (\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3)$, который лежит в эллипсоиде рассеяния E_R^{ε}. Тогда, используя центральную предельную теорему, в первом приближении можно считать, что компоненты правых частей системы совместно нормальны со средними $\{M_1, M_2, M_3\}$ и ковариационной матрицей K.

Ковариационная матрица K дается соотношением:

$$K = \left\| k_{ij} \right\|_{i,j=1,2,3}$$
$$k_{ij} = M\left(\widehat{M}_i - M_i\right)\left(\widehat{M}_j - M_j\right) = M\varepsilon_i\varepsilon_j \tag{42}$$

Элементы матрицы оцениваем по экспериментальным данным:

$$k_{ij} = M\left(\frac{1}{N}\sum_{s}^{N}(\widehat{D}_s^i - M_i) \cdot \frac{1}{N}\sum_{l}^{N}(\widehat{D}_l^j - M_j)\right) = \frac{1}{N}(M_{i+j} - M_i M_j) \tag{43}$$

Где M_q заменяется оценкой $\widehat{M}_q$

Эллипсоид рассеяния правых частей системы $E_R^{\varepsilon} = \{\varepsilon^T K^{-1}\varepsilon \leq R^2\}$ радиуса R, отвечающего надежности $0 \ll p < 1$, задается соотношением:

$$P\{(\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_3)\epsilon E_R^{\varepsilon}\} = 2\frac{\pi^{\frac{2}{3}}}{\Gamma\left(\frac{3}{2}\right)}\int_0^R r^2 e^{-\frac{r^2}{2}} dr \geq p \tag{44}$$

Где $\Gamma(\cdot)$ - гамма функция.

4.6. Рассеяние параметров модели. Аналитический подход.

Оценки $V(\widehat{m}_j)$ и $V(\hat{s}_j^2)$ являются оценками изменчивости параметров модели, которые находятся через возмущения правой части системы.

Учитывая, что решения системы метода моментов $(\widehat{m}_j, \hat{s}_j, \hat{C}_j)$ состоятельны и асимптотически совместно нормальны, получаем, что в первом приближении верно равенство:

$$\frac{\partial M}{\partial U} \cdot \Delta U_j = \Delta\widehat{M} = \varepsilon \tag{45}$$

Где $U_j = \left(\widehat{m}_j, \hat{s}_j, \hat{C}_j\right)^T$, $\Delta U_j = \left(\widehat{m}_j - m_j, \hat{s}_j - s_j, \hat{C}_j - C_j\right)^T$, $\frac{\partial M}{\partial U}$ – матрица производных левых частей системы (35).

Таким образом, если возмущения правых частей системы (38) лежат в эллипсоиде $E_R^{\varepsilon} = \{\varepsilon^T K^{-1} \varepsilon \leq R^2\}$, то решения системы лежат в эллипсоиде E_R^U:

$$E_R^U = \{\Delta U_j : \Delta U_j^T \cdot K_U^{-1} \cdot \Delta U_j \leq R^2\} \tag{46}$$

Где $K_U = \left(\frac{\partial M}{\partial U}\right)^{-1} \cdot K \cdot \left(\left(\frac{\partial M}{\partial U}\right)^T\right)^{-1}$, K – ковариационная матрица правых частей системы.

Матрица K_U оценивалась с помощью математического пакета «Mathematica». Первые два диагональных элемента матрицы – это веса $V(\widehat{m}_j)$ и $V(\hat{s}_j^2)$ для формулы оценки взвешенного решения (40).

4.7. Бутстрап подход к оценке рассеяния параметров модели

Статистический бутстрап (bootstrap) - метод определения статистик вероятностных распределений, основанный на многократной генерации выборок методом Монте-Карло на базе имеющейся выборки. Позволяет просто и быстро оценивать различные статистики (доверительные интервалы, дисперсию) для сложных моделей.

Пусть $\widehat{D}_i$ – измерения, полученные ЭПР методом, $i = 1, \dots, N$. Из имеющегося пула измерений с помощью бутстрап метода сгенерируем 1000 новых выборок $\widetilde{D}_j$ (47) такого же размера, что и исходная выборка ($j = 1, \dots, N$). Каждое значение генерируемой выборки равновероятно выбирается среди значений исходной выборки, при этом выбранное значение не исключается из выбора следующего значения и может быть выбрано повторно.

$$\begin{gathered} \widehat{D}_i \xrightarrow{bootstrap} \widetilde{D}_j^k \\ i, j = 1, \dots, N, \qquad k = 1, \dots, 1000 \end{gathered} \tag{47}$$

Решая систему (38) для каждой бутстрап выборки $\{\widetilde{D}_j^k\}$, находим новые оценки параметров $\widehat{m}^k$, $\hat{s}^k$. Стандартные отклонения полученных оценок используем в формуле для расчета взвешенного решения (40).

4.8. Оценка параметров фонового распределения доз, систематические ошибки и пределы индивидуализации различных методик

Анализ ЭПР измерений фоновых доз показал, что у 2,3% немониторируемых доноров встречаются высокие дозы в интервале 560 - 3300 мГр, которые не могут быть отнесены к фоновым дозам. Измерения фоновых доз в одной и той же популяции для доноров со средним возрастом 62 года, выполненные 6-ю различными методами, достоверно отличались друг от друга. Результаты ЭПР дозиметрии, полученные в рамках каждого из методов, являются неравноточными и смещенными.

Так как среди методик, используемых для измерений необлученных образцов, только у методики под номером 5 среднее значение полученных измерений находится выше предела детектирования, то индивидуальное решение, найденное для нее, будет и общим решением. Процедура усреднения индивидуальных решений для разных методик не потребуется.

С помощью разработанной стохастической модели к оценке функции неопределенности измерения дозы ($g(D)$) получаем, что форма функции неопределенности для этой методики может быть представлена уравнением:

$$g(D) = \begin{cases} 47;\ D \leq 100 \\ 30.9 + \dfrac{15.8}{1 + \exp(\dfrac{D - 304}{42})};\ D > 100 \end{cases} \qquad (48)$$

Индивидуальное решение для этой методики получено с параметрами m=3.9±0.5 и s=0.7±0.1. При этом точность численного метода применительно к выбранной методике представлена в таблице (Таблица 15). Среднее значение фоновой дозы при этом равно 61 мГр.

Таблица 15 – Точность численного метода

Номер методики	$\lvert\widetilde{m} - \widehat{m}\rvert$	$\lvert\tilde{s} - \hat{s}\rvert$	$\lvert\tilde{C} - \hat{c}\rvert$
5	0.02	0.006	1

Полученное значение средней фоновой дозы позволяет оценить систематические ошибки для исследуемых ЭПР методик (Таблица 16) и методик, используемых при измерении резцов (Таблица 17).

Таблица 16 – Систематические ошибки ЭПР методик (моляры и премоляры)

Номер методики	Лаборатория	Годы измерения	Систематическая ошибка (С), мГр
1	IMP	2000- 2001	136±23
2	IMP	2002	74±23
3	IMP	2003	-1±21
4	HMGU	2002	-14±10
5	HMGU	2007-2009	52±8
6	ISS	2005-2008	-64±13

Таблица 17 – Систематические ошибки ЭПР методик (резцы)

Номер методики	Лаборатория	Часть эмали	Годы измерения	Систематическая ошибка (С), мГр
1	IMP	Вся	2001	256±39
2	IMP	Передняя	2000-2001	355±84
3	IMP	Задняя	2000-2001	325±49
4	ISS	Задняя	2007-2008	190±51
5	HMGU	Передняя	-	337±48
6	HMGU	Задняя	-	186±40

Полученное распределение фоновых доз хорошо согласуется с данными реального эксперимента. На Рисунок 19 представлено сравнение эмпирического распределения фоновых измерений с теоретическим логнормальным распределением для методики 5 (моляры и премоляры).

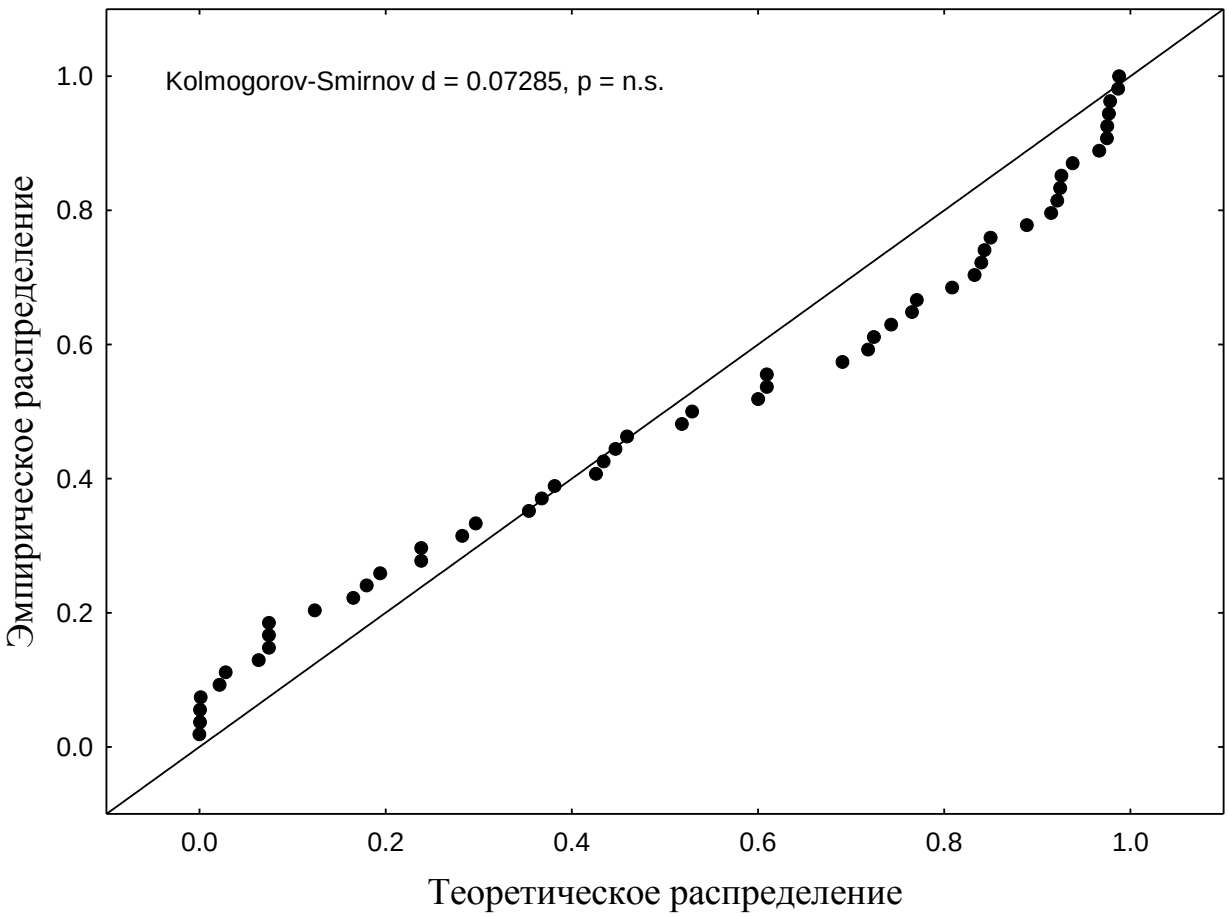

Рисунок 19 – Сравнение эмпирического распределения фоновых доз для методики 5 (моляры и премоляры) и теоретического логнормального распределения

Дополнительно к показателям качества различных ЭПР методик, используемых в совместном межлабораторном калибровочном эксперименте, оценены пределы индивидуализации (Таблица 18).

Таблица 18 – Пределы индивидуализации различных ЭПР методик

Методика (приготовление/измерение)	Предел индивидуализации (LI), мГр
IMP/IMP	547
IMP/ISS	343
IMP/GSF	744
ISS/IMP	568
ISS/ISS	230
ISS/GSF	292
GSF/IMP	324
GSF/ISS	249
GSF/GSF	185

Использование бутстрап подхода в текущей задаче оценке погрешностей параметров логнормального распределения для метода 5 дает погрешности 0.6 и 0.2, которые сравнимы с оценками 0.5 и 0.1, полученными аналитически. При этом большие величины, полученные методом бутстрап вполне ожидаемы, поскольку при выборе с возвращениями, реализуемом в бутстрапе, могут генерироваться нереалистические выборки (например, не исключена возможность получить выборку из повторяющегося одного и того же значения). Таким образом, бутстрап оценка может рассматриваться как консервативное приближение (не занижающее оценки погрешностей и ширины доверительного интервала). Учитывая вышесказанное, а также, принимая во внимание, что временные затраты для поиска параметров фонового распределения для каждой сгенерированной выборки несопоставимы с затратами на получение аналитических оценок, применение бутстрап подхода представляется оправданным только в случае невозможности аналитического подхода в решении задачи.

4.9. Заключение к главе

В предположении логнормального распределения ($LogN[m, s]$) фоновых доз с помощью предложенного метода были оценены параметры этого распределения для сельских жителей Южного Урала: $m = 3.9$ и $s = 0.7$.

Среднее значение фоновой дозы при этом равно 61 мГр с 25-75 % доверительным интервалом равным 30-76 мГр. Таким образом, учитывая, что средний возраст донора был 62 года, получаем среднюю фоновую дозу 1 мГр/год. Полученное значение хорошо согласуется с результатами предыдущих исследований на других популяциях, где фоновая доза оценена в 0.7-5 мГр/год.

Полученное значение средней фоновой дозы позволило оценить систематические ошибки исследуемых ЭПР методик, что, в свою очередь, позволяет провести гармонизацию результатов ЭПР измерений.

Глава 5. Гармонизация измерений доз у жителей долины реки Теча

Ранее было отмечено, что результатом ЭПР измерения является доза, которая содержит в себе фоновую составляющую, систематическую ошибку методики и дозу, полученную в результате изучаемого инцидента. В предыдущей главе было предложено считать, что распределение фоновых доз в популяции имеет логнормальную форму, и оценены параметры этого распределения для сельских жителей Уральского региона. С помощью найденного фонового распределения доз были оценены систематические ошибки использованных ЭПР методик, что позволит гармонизировать экспериментальные данные, полученные при исследованиях на реке Теча.

5.1. Гармонизация и сравнение с фоновым уровнем доз

ЭПР измерения образцов были проведены с использованием различных методик. Каждая методика уникальна и имеет свою систематическую ошибку, поэтому перед объединением данных, полученных разными методиками, необходима их гармонизация. Для гармонизации данных вычтем из измеренной дозы систематическую ошибку используемой методики. Сравнение гармонизированных и оригинальных данных представлено на Рисунок 20.

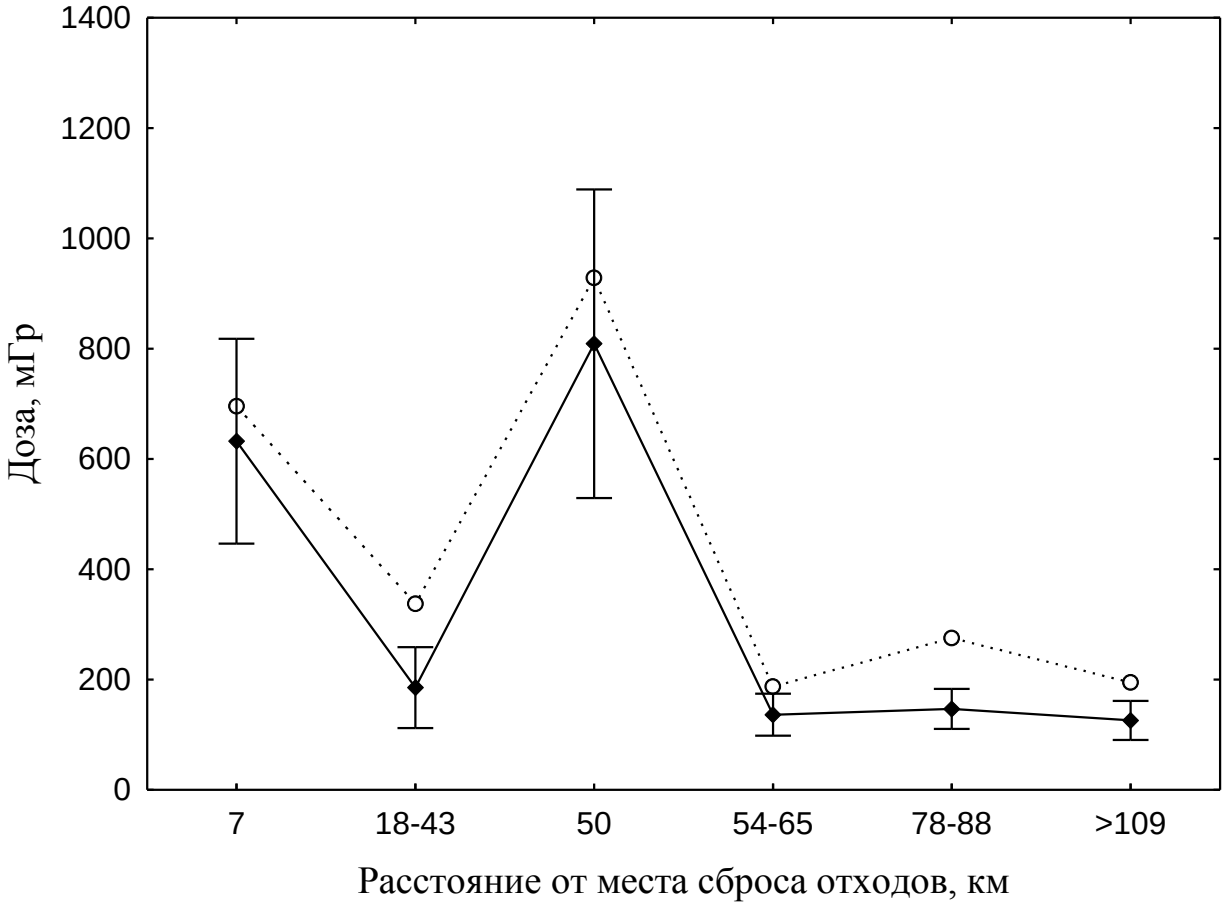

Рисунок 20 – Сравнение гармонизированных (сплошная линия, усы – стандартная ошибка) и измеренных (прерывистая линия) доз

Видно, что после гармонизации средний уровень доз понизился на 9%-45%, показав минимальный сдвиг для села Метлино и максимальный – для сёл, расположенных на расстоянии 18-43 км от места сброса. Исчез ничем не оправданный дозовый пик в области Муслюмово и Курманово (78-88 км). Максимальные индивидуальные дозы также зафиксированы в селах Муслюмово и Надырово: 2.7 Гр и 2.6 Гр соответственно.

В предыдущей главе было установлено, что распределение фоновых доз среди сельских жителей Уральского региона можно описать с помощью логнормального распределения – LogN(3.9, 0.7) со средним значением 61 мГр. Сравним гармонизированные данные с фоновым уровнем (Рисунок 21).

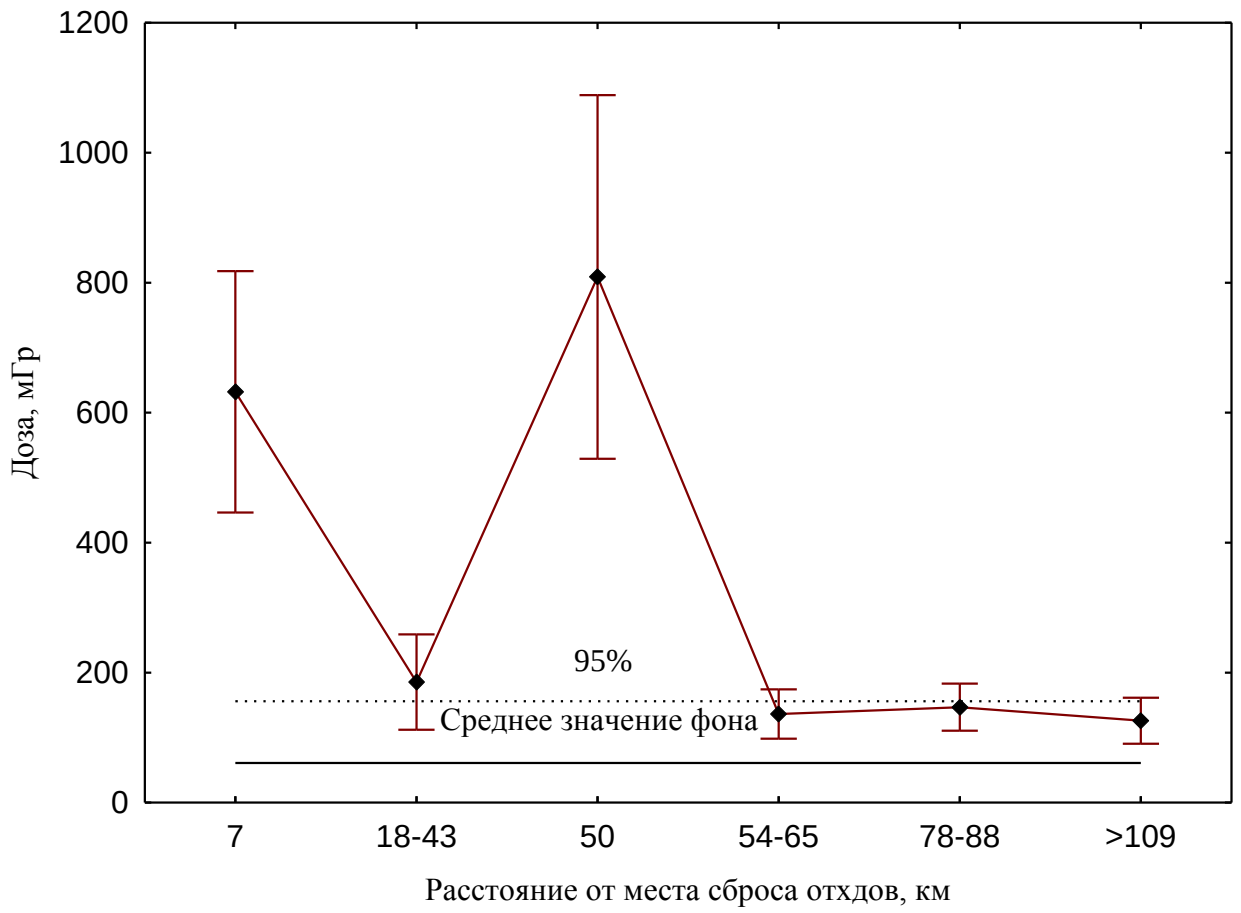

Рисунок 21 – Сравнение гармонизированных данных измерений доз у жителей прибрежных районов реки Теча с фоновым уровнем облучения для сельских жителей Уральского региона

Из рисунка видно, что средние значения гармонизированных доз превышают среднее значение фоновой дозы, но для сел из нижнего течения (далее 54 км от места сброса) уровень облучения близок к фоновому уровню и попадает в 95% доверительный интервал распределения фоновых доз. Высокие дозы, полученные жителями сел Метлино и Надырово, обусловлены тем, что села частично расположены на непроточных участках речной системы (Метлинский пруд и слепой отросток в Надырово) с заболоченной поймой. В этих местах за счет повышенной сорбции и слабого вымывания радионуклидов наблюдались максимальные содержания радионуклидов в прибрежных почвах [22]. Кроме того, в селе Надырово были взяты образцы от 2х людей, живших в

одном доме прямо на берегу залива. Для них были получены максимальные значения доз среди жителей данного села: 2.6 Гр и 2 Гр. Если не учитывать эти измерения при анализе, то средняя доза для жителей села Надырово упадет с 810 мГр до 430 мГр. В связи с описанными причинами, для этих сел зафиксировано наибольшее число измерений со значениями доз выше предела индивидуализации для используемой ЭПР методики (Таблица 19).

Таблица 19 – Сравнение с пределами индивидуализации

Место проживания/облучения	Расстояние до точки сброса, км	Количество измерений	Измерений выше предела индивидуализации (LI),%
с.Метлино	7	17	35
Теча-брод, с.Старое Асаново, с.Малое Таскино, с.Герасимовка	18-43	21	14
с.Надырово	50	10	60
с.Ибрагимово, с.Исаево, ПХТ-42	54-65	42	12
с.Муслюмово, с.Курманово	78-88	12	25
с.Бродоколмак, с.Бакланово, с.Ключевское.	109-223	4	25

Как видно из таблицы, дозы, которые с уверенностью можно назвать индивидуальными, обнаружены у более чем половины исследованных людей только в с. Надырово. Даже если не учитывать аномальные дозы для двух человек, проживающих на берегу залива, измерений с дозами выше предела индивидуализации будет 50%. В среднем же индивидуальные дозы реконструированы у 23% жителей. Это говорит о том, что для дозиметрии жителей прибрежных территорий р.Теча, предпочтителен групповой подход. В частности, при дальнейшем сопоставлении результатов ЭПР дозиметрии и расчетов доз с использованием дозиметрической системы р. Теча (TRDS-2000) [23].

5.3. Заключение к главе

Полученные в результате исследований на реке Теча экспериментальные данные ЭПР измерений были гармонизированы с помощью поправки на систематическую ошибку используемой ЭПР методики. Показано, что максимальные дозы были получены жителями сел Метлино и Надырово: 2.7 Гр и 2.6 Гр соответственно. Средние значения доз в них - 630 мГр и 810 мГр соответственно. Для сел, расположенных дальше 54 км по течению от места сброса отходов, среднее превышение фонового уровня облучения для сельских жителей Уральского региона составляет 65 мГр и попадает в 95% доверительный интервал для распределения фоновых доз. Превышение пределов индивидуализации было зафиксировано для 23% жителей всех прибрежных населенных пунктов, но для сел Метлино и Надырово этот показатель превышает средний уровень и равен 35% и 60% соответственно. Высокие дозы, полученные жителями сел Метлино и Надырово, обусловлены тем, что села частично расположены на непроточных участках речной системы с заболоченной поймой, которая из-за повышенной сорбции и слабого вымывания радионуклидов содержит максимальные содержания радионуклидов.

Заключение

В текущей работе были показаны сложности в оценке показателей качества различных ЭПР методик. Предложенные ранее подходы к их оценке разрабатывались на основе одной методики и были плохо применимы к оценке показателей качества другой методики. Поэтому был разработан универсальный алгоритм, описывающий все источники неопределенностей в калибровочном ЭПР эксперименте. Реализация этой модели с помощью метода Монте-Карло была применена к оценке показателей качества различных ЭПР методик. Было установлено, что критические значения амплитуд ЭПР сигнала (AC) находятся в интервале 16-85 отн.ед., а пределы детектирования (LDA) – 30-253 отн.ед. Критические значения доз (DC) – 48-233 мГр, и пределы детектирования (LDD) – в интервале от 94 мГр до 635 мГр для методик GSF/GSF и IMP/GSF соответственно.

Предложенная универсальная схема по оценке показателей качества различных ЭПР методик была реализована в компьютерном программном комплексе, который был зарегистрирован в государственном реестре программ ЭВМ (свидетельство о государственной регистрации №2014610805 от 17.01.2014). Использование разработанной программы позволяет легко оценивать и сравнивать показатели качества методик различных лабораторий. Кроме этого программный комплекс помогает определить неопределенность измерений амплитуды и дозы в зависимости от полученных значений. Программа была внедрена в исследовательские процедуры в Уральском научно-практическом центре радиационной медицины и выложена в свободный доступ для ее использования другими лабораториями.

Предложен метод по оценке параметров фонового распределения доз для жителей Уральского региона. Установлено, что средняя фоновая доза, накопленная жителями, равна 61 мГр, что дает оценку среднегодового фонового облучения на уровне 1мГр/год. Найденные оценки среднего фонового

облучения помогли оценить систематические ошибки различных ЭПР методик, которые находятся в диапазоне от 64 мГр до 136 мГр. Учитывая найденное распределение фоновых доз, было установлено, что предел индивидуализации может находиться в достаточно широком диапазоне: от 185 мГр до 744 мГр. Найденные систематические ошибки исследуемых ЭПР методик, позволили уточнить результаты ЭПР измерений и провести гармонизацию данных, полученных от разных лабораторий.

Проведена гармонизация данных, полученных в результате исследований на реке Теча. Исследования проводились с целью для оценки уровня облучения жителей прибрежных регионов в результате загрязнения ее вод радиоактивными отходами в 1949-1956 годах. Показано, что максимальные дозы были получены жителями сел Метлино и Надырово. Средние значения доз в них 630 мГр и 810 мГр соответственно. Максимальные индивидуальные дозы также получены в этих селах 2.7 Гр и 2.6 Гр. Для сел, расположенных дальше 54 км по течению от места сброса отходов, среднее превышение фонового уровня для этого региона составляет 65 мГр и попадает в 95% доверительный интервал для распределения фоновых доз. Техногенные дозы, достоверно отличающиеся от фоновых уровней, были зафиксированы только у 23% всех жителей прибрежных районов реки Теча. Для сел Метлино и Надырово, где наблюдались наиболее высокие дозы, этот показатель превышает средний уровень и равен 35% и 60% соответственно. Максимальные индивидуальные дозы также зафиксированы в селах Муслюмово и Надырово: 2.7 Гр и 2.6 Гр соответственно. Высокие дозы, полученные жителями сел Метлино и Надырово, обусловлены тем, что села частично расположены на непроточных участках речной системы с заболоченной поймой, которая из-за повышенной сорбции и слабого вымывания радионуклидов накапливала радионуклиды (главным образом ^{137}Cs).

Таким образом, были получены оценки техногенных доз в эмали зубов жителей прибрежных территорий р. Теча. Следует отметить, что накопленная

техногенная доза в эмали сформирована как внешним облучением (главным образом за счет ^{137}Cs в окружающей среде), так и внутренним облучением (главным образом за счет остеотропного ^{90}Sr). ЭПР-дозиметрия эмали зубов используется для измерения доз внешнего облучения. Поэтому полученные результаты в дальнейшем будут использоваться для расчета доз внешнего облучения путем вычитания вклада внутренней компоненты.

Литература

1. Воробьева, М.И. Медико-биологические и экологические последствия радиоактивного загрязнения реки Теча / М.И. Воробьева, М.О. Дегтева; под ред. А.В. Аклеева, М.Ф. Киселева. – М.:ФУ «Медбиоэкстрем», 2000. – 532с.
2. Основные закономерности распределения радионуклидов в системе реки Теча по результатам многолетних наблюдений. - ФГБУ «Челябинский ЦГМС». – Режим доступа: http://www.chelpogoda.ru/pages/332.php.
3. Degteva, M.O. Dose reconstruction system for the exposed population living along the Techa River/M.O. Degteva, M.I. Vorobiova, V.P. Kozheurov et al.// Health Phys. – 2000. - V. 78 – P. 542–554.
4. ГОСТ Р 22.3.04-96. Метод определения поглощенных доз внешнего гамма-излучения по спектрам электронного парамагнитного резонанса зубной эмали. – М.: Стандартинформ, 1996. – С.3-4.
5. Chumak, V. The first international intercomparison of EPR-dosimetry with teeth: first results/V. Chumak, I. Bailiff, N. Baran et al.//Appl. Radiat. Isot. – 1996. – V. 47. - No. 11–12. – P. 1281–1286.
6. Wieser, A. The second international intercomparison on EPR tooth dosimetry/ A. Wieser, K. Mehta, S. Amira et al.// Radiat. Meas. – 2000. – V. 32. - No. 5–6. - P. 549–557.
7. Wieser, A. The third international intercomparison on EPR tooth dosimetry: Part 2, final analysis/A. Wieser, R. Debuyst, P. Fattibene et al.//Radiat. Prot. Dosim. – 2006. – V. 120. – No. 1–4. - P. 176–183.
8. Hoshi, M. Interlaboratory comparison of tooth enamel dosimetry on Semipalatinsk region: Part1, general view/ M. Hoshi, S. Toyoda, A. Ivannikov et al.//Radiat. Meas. – 2007. – V.42. – P. 1005–1014.

9. Ivannikov, A. Interlaboratory comparison of tooth enamel dosimetry on semipalatinsk region: part 2, effects of spectrum processing/ A. Ivannikov, S. Toyoda, M. Hoshi et al.//Radiat. Meas. – 2007. – V. 42. – P. 1015–1020.
10. Иванов, Д.В. Изменение дозиметрических возможностей метода ЭПР на зубной эмали в процессе многолетней эксплуатации оборудования Института Физики Металлов/ Д.В. Иванов, Е.А. Шишкина, А.Ю. Волчкова и др.//АНРИ №3 66 (2011). - ISSN 2075-1338. - С. 65-71.
11. ISO/IEC - 2007. International Organization for Standardization (ISO), ISO/IEC Guide 99:2007, International vocabulary of metrology – Basic and general concepts and associated terms (VIM). Geneva Switzerland. – 92 p.
12. РМГ 78-2005. Ионизирующие излучения и их измерения. Термины и понятия. - М.: Стандартинформ, 2006. – С. 5-7.
13. Крупнейшие радиационные аварии в мире. Справка./ РИА Новости. – 2008. – Режим доступа: http://ria.ru/spravka/20080426/105961878.html.
14. Лягинская, А.М. Генетические эффекты у ликвидаторов последствий аварии на чернобыльской АЭС / А.М. Лягинская, А.Р. Туков, В.А. Осипов, О.Н. Прохорова // Радиационная биология. Радиоэкология. - 2007. − Т. 47, № 2. − С. 188-195.
15. Intern. recommendations for X-ray and Radium // Brit. J. Radiol. - 1934. – № 7. – P. 695–699.
16. Бурлакова, Е.Б. Новые аспекты закономерностей действия низкоинтенсивного облучения в малых дозах / Е.Б. Бурлакова, А.Н. Голощапов, Г.П. Жижина и др.// Радиационная биология. Радиоэкология. - 1999. − Т. 39, № 1. − С. 20-34.
17. Low doses of Radiation: Are They Dangerous?/ed. by E.B. Burlakova. − N.Y.: Nova Science Publishers, Inc. - 2000. – P.340.
18. Бурлакова, Е.Б. Биологические эффекты малых доз радиации/ Е.Б. Бурлакова, под ред. Т.В. Белоокая// Экологическая антропология.

Ежегодник, Раздел VII. Научная жизнь и сообщения. − Минск: Белорусский комитет «Дзеці Чарнобыля». - 2001. − С. 360-362.

19. Ллойд, Д. Хромосомные аберрации лимфоцитов человека и малые дозы радиации/ Д. Ллойд// Инф. бюлл. «Биологические эффекты малых доз радиации». − Минск, 10-12 июня 2001. − № 3. − С.8-9.
20. Зайнуллин, В.Г. Генетические эффекты хронического облучения в малых дозах ионизирующего излучения / В.Г. Зайнуллин. - СПб.: Наука, 1998. - 100 с.
21. Shishkina, E.A. Issues in the validation of external dose: Background and internal dose components of cumulative dose estimated using the electron paramagnetic resonance (EPR) method. Final Report for Milestone 7, Part1. US/ E.A. Shishkina, V.A. Shved, M.O. Degteva et al.// Russian Joint Coordinating Committee on Radiation Effects Research. Project1.1., 2003, P. 67.
22. Shagina, N.B. Reconstruction of the contamination of the Techa River in 1949–1951 as a result of releases from the “MAYAK” Production Association / N.B. Shagina, M.I. Vorobiova, M.O. Degteva et al.// Radiat. Environ. Biophys. – V. 51. – No. 4. – P. 349-366.
23. Degteva, M.O. Dose reconstruction system for the exposed population living along the Techa River / M.O. Degteva, M.I. Vorobiova, V.P. Kozheuro et al.// Health Phys. - V 78. - 2000. – P. 542–554.
24. Последствия техногенного радиационного воздействия и проблемы реабилитации Уральского региона / Под редакцией С.К. Шойгу. – М.:Издательство «Комтехпринт», 2002. - С. 12.
25. Крестинина, Л.Ю. Смертность от злокачественных новообразований в когорте лиц, облученных на реке Теча: предварительные оценки риска/ Л.Ю. Крестинина, Д.Л. Престон, Е.В. Остроумова и др. // Бюллетень сибирской медицины. – 2005. - № 2. - С. 52-62.

26. Kosenko M.M. Cancer mortality and radiation risk evaluation for the Techa River population / M.M. Kosenko, M.O. Degteva// Sci. Total Environ. - 1994. - V. 142. - P. 73–89.
27. Косенко, М.М. Методология наблюдения за когортой лиц, облучившихся на реке Теча / М.М. Косенко, А.В. Аклеев, Л.Ю. Крестинина и др.// Сиб. мед. журн. - 2003. - Т. 18. - № 5. - С. 40–48.
28. Ostroumova, E. Risk analysis of leukemia incidence among people living along the Techa River: A nested case control study / E. Ostroumova, B. Gagnière, D. Laurier et al.// J. Radiol. Prot. – 2006. – V. 26 – No 1. – P.17-32.
29. Krestinina, L.Y. Leukaemia incidence in the Techa River Cohort: 1953-2007/ L.Y. Krestinina, F.G. Davis, S. Schonfeld et al.// Br J Cancer. – 2013. - V.109(11). – P. 2886-2893.
30. Davis, F.G. Solid Cancer Incidence in the Techa River Incidence Cohort: 1956-2007 / F.G. Davis, L.Y. Krestinina, D. Preston et al.// Radiat Res. – 2015. - V. 184(1). – P. 56-65.
31. Vorobiova, M.I. Review of historical monitoring data on Techa River contamination/ M.I. Vorobiova, M.O. Degteva, D.S. Burmistrov et al.// Health Phys – 1999. - V. 76. – P. 605–618.
32. Degteva, M.O. Re-evaluation of waterborne releases of radioactive materials from the “Mayak” Production Association into the Techa River in 1949-1951 / M.O. Degteva, N.B. Shagina, M.I. Vorobiova et al.// Health Phys – 2012. - V. 102. – P. 25–38.
33. Tolstykh, E.I. Age dependencies of 90Sr incorporation in dental tissues: Comparative analysis and interpretation of different kinds of measurements obtained for residents on the Techa River / E.I. Tolstykh, E.A. Shishkina, M.O. Degteva et al.// Health Phys - V. 85 – 2003 – P. 409–419.

34. Гаврилин, Ю.И. Методы и средства ретроспективной оценки дозы внутреннего облучения щитовидной железы человека по результатам определения активности интегральных выпадений йода-131, цезия-137 и йода-129: дис. ... док. тех. наук: 05.26.02/Гаврилин Юрий Иванович. Москва, 2013. 204с.
35. Bougrov, N.G. Investigation of thermoluminescence dosimetry in the Techa River flood plain: Analysis of the new results / N.G. Bougrov, V.A. Baturin, H.Y. Göksu et al.// Radiat Prot Dosim. – 2002. – V. 101. – P. 225–228.
36. Шишкина, Е.А. Результаты дозиметрических исследований зубов жителей прибрежных территорий р. Теча / Е.А. Шишкина, М.О. Дегтева, Е.И. Толстых и др.//ВРБ (журнал ПО “Маяк”), спец. выпуск 1 – 2006 - Р. 26, 44.
37. Vozilova, A.V. Preliminary FISH-based assessment of external dose for residents exposed on the Techa River / A.V. Vozilova, N.B. Shagina, M.O. Degteva et al.// Radiation Research – 2012 -V. 177(1) - P.84-91.
38. Tatsumi, J.M. ESR dosimetry using human tooth enamel/ J.M. Tatsumi, S. Okajima//ESR Dating and Dosimetry. - 1985. – P.397-405.
39. Скворцов, В.Г. Ретроспективная оценка индивидуальных накопленных доз с использованием метода ЭПР спектроскопии эмали зубов для населения Брянской области, облученного в результате Чернобыльской аварии / В.Г. Скворцов, А.И. Иванников, Л.Г. Хамидова и др.// Радиация и риск. - 1996. - Вып. 7. - С. 259–269.
40. Ikeya M. Atomic bomb and accident dosimetry with ESR: natural rocks and human tooth in vivo-spectrometer / M. Ikeya, H. Ishii //Appl. Radiat. Isot. – 1989. - vol. 40. – P. 1021-1027.
41. Шишкина, Е.А. Проблемы и перспектива ЭПР исследований на Южном Урале./ Е.А. Шишкина, М.О. Дегтева, В.А. Швед и др.// Вопросы радиационной безопасности. – 2003. - №2. - С.59-70.

42. Degteva, M.O. Electron paramagnetic resonance and fluorescence in situ hybridization-based investigation of individual doses for persons living in Metlino in the upper reaches of the Techa River/ M.O. Degteva, L.R. Anspaugh, A.V. Akleev// Health Physics. – 2005. – V. 88 – P.139-153.
43. Бримкулов, Н.Н. Ретроспективная реконструкция доз облучения у ликвидаторов аварии на чернобыльской АЭС методом ЭПР-спектрометрии эмали зуба./ Н.Н. Бримкулов, Н. Нахамура, А.А. Абдуллина и др.// Вестник КРСУ. – 2002. - № 1. – С.68-72.
44. Egersdörfer S. Tooth enamel as a detector material for retrospective EPR dosimetry/ S. Egersdörfer, A. Wieser, A. Müller // Appl. Radiat. Isot. – 1996. – V. 47. - P.1299-1303.
45. IAEA, 2002. Use of the Electron Paramagnetic Resonance Dosimetry with Tooth Enamel for Retrospective Dose Assessment. IAEA-TECDOC-1331. International Atomic Energy Agency,Vienna, Austria, 3, P.57.
46. Fattibene, P. EPR dosimetry with tooth enamel: A review / P. Fattibene, F. Callens// Applied Radiation and Isotopes. – 2010. – V.68. - P.2033–2116.
47. Tolstykh E.I. Possibilities of using human teeth for retrospective dosimetry: analysis of the techa river data/ E.I. Tolstykh, M.O. Degteva, E.A. Shishkina et al.// Radiation Protection Dosimetry. Special Issue. – 2007. - V. 127. - Issue 1-4. – P.511.
48. Fattibene, P. EPR dosimetry intercomparison using smart phone touch screen glass / P. Fattibene, F. Trompier, A. Wieser et al// Radiat Environ Biophys. – 2014. – V.53. – P.311–320.
49. Sholom, S. EPR emergency dosimetry with plastic components of personal goods / S. Sholom, V. Chumak // Health Phys. – 2010. – V. 98. – P.395–399.
50. Yordanov, N.D. EPR and UV spectroscopic study of table sugar as a high-dose dosimeter / N.D. Yordanov, V. Gancheva, E. Georgieva // Radiat Phys Chem. – 2002. – V.65. – P.269–276.

51. Romanyukha, A.A. Geographic variations in the structure of the EPR spectrum of irradiated tooth enamel / A.A. Romanyukha, R.B. Hayes, E.H. Haskell et al.// Radiat. Prot. Dosim. – 1999. – V.84. - P.445–450.
52. Iwasaki, M. Differences in the radiation sensitivity of human tooth enamel in an individual and among the individuals in dental ESR dosimetry/ M. Iwasaki, C. Miyazawa, T. Uesawa et al.// Radiaisotopes. – 1995. – V.44. - P.785-788.
53. Ivannikov, A.I. Wide-scale EPR retrospective dosimetry: results and problems / A.I. Ivannikov, V.G. Skvortzov, V.F. Stepanenko et al.//Radiat.Prot.Dosim. – 1997. – V.71. - P.175-180.
54. Pass, B. Collective biodosimetry as a dosimetryc “Gold standard”. A study of three radiation accidents./ B. Pass, A.E. Baranov, E.D. Kleschenko et al. // Health Physics. – 1997. – V.72. - P.390-396.
55. Тикунов, Д.Д. Развитие метода ретроспективной индивидуальной дозиметрии на основе ЭПР-спектроскопии эмали зубов: автореф. дис. … канд. физ.-мат. наук: 01.04.01/Тикунов Дмитрий Данилович. - Обнинск, 1999. - С.5.
56. Шишкина, Е.А. Вариабельность радиационной чувствительности эмали зубов жителей Уральского Региона / Е.А. Шишкина, Е.И. Толстых, М.О. Дегтева и др. // АНРИ. - 2012. - V. 69. - P.41-51.
57. Wieser, A. EPR dosimetry of bone gains accuracy by isolation of calcified tissue / A. Wieser, E. Haskell, A.D. Kenner, F. Bruenge// Appl.Rdiat.Isot. – 1994. – V.45. - P.525-526.
58. Romanyukha, A. Q-band electron paramagnetic resonance dosimetry in tooth enamel: biopsy procedure and determination of dose detection limit / A. Romanyukha, F. Trompier, R.A. Reyes. // Radiat Environ Biophys. – 2014. – V.53. – P.305–310.

59. Gómez, A. Retrospective biodosimetry with small tooth enamel samples using K-Band and X-Band/ A. Gómez, A. Kinoshita, S.J. Leonor et al.// Radiation Measurements. – 2011. – V.46. – I.9. – P.754-759.
60. Wieser, A. Assessment of performance parameters for EPR dosimetry with tooth enamel /A. Wieser, P. Fattibene, E.A. Shishkina et al.// Radiat. Meas. – 2008. – V.43. – I. 2–6. – P.731–736.
61. Retrospective EPR dosimetry with teeth of persons with strontium body burden/A. Wieser, A.A. Romanyukha, V.P. Kozheurov, M.O. Degteva //Presented at the 4th International Symposium on ESR Dosimetry and Applications. May 15-19, 1995, Munchen, Germany.
62. Wieser, A. Comparison of sample preparation and signal evaluation methods for EPR analysis of tooth enamel/ A. Wieser, S. Onori, D. Aragno et al.// Appl. Radiat. Isot. – 2000. – V.52. – P.1059-1064.
63. Wieser, A. Dependencies of the radiation sensitivity of human tooth enamel in EPR dosimetry/ A. Wieser, N. El-Faramawy, R. Meckbach// Appl. Radiat. Isot. – 2001. – V.54. – P.793-799.
64. Zdravkova, M. An in vitro L-band EPR study with whole human teeth in a surface coil resonator/ M. Zdravkova, A. Wieser, N. El-Faramawy et al.// Radiat. Meas. – 2003. – V.37. – P.347-353.
65. Grun, R. Errors in dose assessment introduced by the use of the "linear part" of a saturating dose response curve/ R. Grun// Radiat. Meas. – 1996. – V.26. – I.2. – P.297–302.
66. Заляпин, В.И. О линейности статистической модели ЭПР-отклика на воздействие ионизирующего излучения в дозиметрических исследованиях эмали зубов./ В.И. Заляпин, Е.А. Шишкина // Вестник ЮУрГУ. Серия Математическое моделирование и программирование. – 2010. - №16(192). – С.17-22.

67. Liidja, G. Electron paramagnetic resonance of human tooth enamel at high gamma ray doses/ G. Liidja, A. Wieser// Radiat. Prot. Dosim. – 2002. – V.101. – I.1–4. – P.503–506.
68. Volchkova, A.Y. Harmonization of dosimetric information obtained by different EPR methods: Experience of the Techa river study / A.Y. Volchkova, E.A. Shishkina, D. Ivanov et al.// Radiation Measurements. – 2011. – V.46.- P.801-807.
69. ISO-1995. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. ISO/TAG4/WG3. Corrected and Reprinted Edition. International Organization for Standardization, 1995, Geneva. ISBN9267101889.
70. ГОСТ Р 54500.3-2011/Руководство ИСО/МЭК 98-3:2008. Неопределенность измерения. Руководство по выражению неопределенности измерения. – М.: Стандартинформ, 2012. – С.2.
71. Haskell, E.H. Improved accuracy of EPR dosimetry using a constant rotation goniometer/ E.H. Haskell, R.B. Hayes, G.H. Kenner// Radiat. Meas. – 1997. – V.27. – P.325–329.
72. Egersdörfer, S. Tooth enamel as a detector material for retrospective EPR dosimetry / S. Egersdörfer, A. Wieser, A. Müller // Appl. Radiat. Isot. – 1996. – V.47. - P.1299-1303.
73. Iwasaki, M. Differences in the radiation sensitivity of human tooth enamel in an individual and among the individuals in dental ESR dosimetry/ M. Iwasaki, C. Miyazawa, T. Uesawa et al.// Radioisotopes. – 1995. – V.44. - P.785-788.
74. Ivannikov, A.I. Wide-scale EPR retrospective dosimetry: results and problems /A.I. Ivannikov, V.G. Skvortzov, V.F. Stepanenko et al.//Radiat.Prot.Dosim. – 1997. – V.71. - P.175-180.
75. Pass, B. Collective biodosimetry as a dosimetryc “Gold standard”. A study of three radiation accidents. / B. Pass, A.E. Baranov, E.D. Kleschenko et al.//Health Physics. – 1997. – V.72. - P.390-396.

76. Ivannikov, A.I. Dose reconstruction by EPR spectroscopy of tooth enamel: Application to the population of Zaborie village exposed to high radioactive contamination after the Chernobyl accident./ A.I. Ivannikov, E. Gaillard-Lecanu, F. Trompier et al.// Health Phys. – 2004. – V.86. – I.2. – P.121–134.
77. Ivannikov, A.I. Calibration of EPR signal dose response of tooth enamel to photons: Experiment and Monte Carlo simulation. / A.I. Ivannikov, D.D. Tikunov, N.B. Borysheva et al.//Radiat. Prot. Dosim. – 2004. – V.108. – P.303–315.
78. Wieser, A. Dependencies of the radiation sensitivity of human tooth enamel in EPR dosimetry/ A. Wieser, N. El-Faramawy, R. Meckbach//Appl. Radiat. Isot. – 2001. – V.54. – P.793–799.
79. Sholom, S.V. 2000. EPR-dosimetry with carious teeth/ S.V. Sholom, E.H. Haskell, R.B. Hayes et al.// Radiat. Meas. – 2000. – V.32. – P.799–803.
80. Wieser, A. Electron paramagnetic resonance measurements of absorbed dose in teeth from citizens of Ozyorsk/ A. Wieser, E. Vasilenko, E. Aladova et al.// Radiat Environ Biophys. – 2014. – V.53. – P.321–333.
81. UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Annex B. Exposures from Natural Radiation Sources. 2000, V.1, P.74.
82. Ivannikov, A.I. Tooth enamel EPR dosimetry: Sources of errors and their correction / A.I. Ivannikov, V.G. Skvortsov, V.F. Stepanenko et al.// Appl. Radiat. Isot. – 2000. – V.52. – P.1291–1296.
83. El-Faramawy, N.A. Estimation of radiation levels by EPR measurement of tooth enamel in Indian populations/ N.A. El-Faramawy //Appl. Radiat. Isot. – 2005. – V.62. – I.2. – P.207–211.
84. Romanyukha, A.A. Aspects of retrospective dosimetry / A.A. Romanyukha, D.F. Regulla// Appl. Radiat. Isot. – 1996. – V.47. – I.11-12. – P.1293–1297.
85. Ivannikov, A.I. Optimisation of recording conditions for the electron paramagnetic resonance signal used in dental enamel dosimetry /

A.I. Ivannikov, F. Trompier, E. Gaillard-Lecanu et al.// Radiat. Prot. Dosim. – 2002. – V.101. – I.1–4. – P.531–538.

86. ISO 11929-7. Determination of the Detection limit and Decision Threshold for Ionizing Radiation Measurements. Part7: Fundamentals and General Applications. International Organisation of Standards, Geneva. - 2005.
87. Nomenclature in Evaluation of Analytical Methods Including Detection and Quantification Capabilities. IUPAC Recommendations 1995. International Union of Pure and Applied Chemistry, 25p.
88. Chumak, V. High precision EPR dosimetry as a reference tool for validation of other techniques/ V. Chumak, S.V. Sholom, E.V. Bakhanova et al.//Appl. Radiat. Isot. – 2005. – V.62. – I.2. - P.141–146.
89. Wieser, A. Comparison of EPR occupational lifetime external dose assessments for Mayak nuclear workers and film badge dose data/ A. Wieser, E. Vasilenko, P. Fattibene et al.// Radiat. Environ. Biophys. – 2006. – V.44. – I.4. - P.279–288.
90. Wieser, A. The third international intercomparison on EPR tooth dosimetry: Part1, general analysis/ A. Wieser, R. Debuyst, P. Fattibene et al.//Appl. Radiat. Isot. – 2005. – V.62. – I.2. - P.163–171.
91. Василенко, И.Я. Радиация и человек. / И.Я. Василенко, О.И. Василенко// Проблемы глобальной безопасности. – 2002. - № 6. - С.13-16.
92. Romanyukha, A.A. Geographic variations in the EPR spectrum of tooth enamel / A.A. Romanyukha, R.B. Hayes, E.H. Haskell, G.H. Kenner// Radiat Prot Dosim. – 1999. – V.84. – P.445–449.
93. Скрябин, А.М. Дозы облучения жителей челябинской области за счет естественного гамма-фона территорий и зданий / А.М. Скрябин, А.Г. Починский// Гигиена и санитария. – 1985. - №1. - С.78-80.
94. Issues in the validation of external dose: Background and internal dose components of cumulative dose estimated using the EPR method: final

report for Milestone 7, Part 1/ E.A. Shishkina, V.A. Shved, M.O. Degteva et al. – Chelyabinsk: Urals Research Center for Radiation Medicine, 2003. – 70p.

95. Nilsson, J. The effects of UV-irradiation on the ESR-dosimetry of tooth enamel/ J. Nilsson, E. Lund, A. Lund// Appl Radiat Isot. – 2001. – V.54. – P.131–139.
96. Тимофеев, Ю.С. Исследование универсальности полуэмпирического подхода к оценке неопределенности ЭПР-дозиметрии зубной эмали/ Ю.С. Тимофеев, Е.А. Шишкина, Д.В. Иванов и др.// Вестник ЮУрГУ. Серия «Математическое моделирование и программирование». - 2010. - №16 (192) - Выпуск 5. - С.94-106.
97. Заляпин, В.И. Математическая статистика: учебное пособие/ В.И. Заляпин, Е.В. Харитонова – Челябинск: Южно-Уральский Государственный Университет, 2008. – 146 с.
98. Shishkina, E.A. Software for evaluation of EPR-dosimetry performance/E.A. Shishkina, Y.S. Timofeev, D.V. Ivanov // Radiation Protection Dosimetry. – 2014. – V.159. – I.1-4. – P.188-193.
99. Шишкина, Е.А. Электронный ресурс «Программный модуль “EPR-dosimetry performance”»/ Е.А. Шишкина, Ю.С. Тимофеев – «ФГБУН УНПЦ РМ ФМБА России» №2014610805 от 17.01.2014. – Режим доступа: http://www.urcrm.ru/general-info/org-structure/biophys-lab/epr-dosimetry-performance.
100. Заляпин, В.И. Статистическая реконструкция распределения фоновых доз облучения по результатам ЭПР измерений/ В.И. Заляпин, Ю.С. Тимофеев, Е.А. Шишкина// Вестник ЮУрГУ. Серия «Математика. Механика. Физика». – 2014. - Том 6. - № 1. – С.22-27.

Приложение А. Свидетельство о регистрации программы

РОССИЙСКАЯ ФЕДЕРАЦИЯ

СВИДЕТЕЛЬСТВО

о государственной регистрации программы для ЭВМ

№ 2014610805

«EPR-dosimetry performance»

Правообладатель: ***Федеральное государственное бюджетное учреждение науки «Уральский научно-практический центр радиационной медицины Федерального медико-биологического агентства» (RU)***

Авторы: ***Шишкина Елена Анатольевна (RU), Тимофеев Юрий Сергеевич (RU)***

Заявка № **2013618442**

Дата поступления **19 сентября 2013 г.**

Дата государственной регистрации

в Реестре программ для ЭВМ ***17 января 2014 г.***

Руководитель Федеральной службы по интеллектуальной собственности

Б.П. Симонов