

Оценка методической погрешности измерения активности РАО различными способами для транспортных контейнеров большого объема

Статья описывает способ определения методической погрешности измерения активности РАО в контейнерах разного типа. В рамках расчетной модели, которая учитывает неоднородность распределения нуклидов в контейнере, проведена оценка величины методической погрешности при проведении измерений разными способами с использованием спектрометрической системы с коллимированным детектором. Результаты исследований могут применяться в методиках измерений контейнеров перед отправкой радиоактивных отходов на захоронение в специализированные организации.

Ключевые слова:

вывод из эксплуатации, радиоактивные отходы, метод Монте-Карло.

**В.Н.Потапов, Ю.Н.Смирский,
О.П.Иванов, И.А.Семина,
А.В.Степанов, Н.Н.Громов,
В.Е.Степанов**

(НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва)

Перед отправкой транспортных контейнеров с радиоактивными отходами на захоронение в специализированные организации осуществляется их паспортизация, т. е. оценка состава и активности находящихся в них радионуклидов. Традиционным способом определения активности того или иного радионуклида в контейнерах является радиометрический метод, основанный на оценке скорости счета в пике полного поглощения аппаратурного спектра одной из энергетических линий излучения радионуклида. Определение скорости счета в пике полного поглощения осуществляется по результатам набора аппаратурного спектра спектрометрическим детектором. В задачах паспортизации контейнеров, как правило, используют коллимированные детекторы, т. е. защищенные от влияния фонового излучения с боковых сторон. Существуют разные варианты измерений контейнеров при оценке активности

радионуклидов в контейнере. Традиционным является подход, когда измерения проводят с одной, двух или четырех сторон. Увеличение числа измерений с различных сторон обусловлено неравномерным распределением активности внутри контейнера, поэтому такой способ позволяет нивелировать влияние неоднородностей в радиоактивных отходах. Следует отметить, что помимо упомянутых выше способов и усреднений результатов измерений, существует еще один подход, основанный на измерениях вращающегося контейнера.

При наполнении больших контейнеров (с объемом несколько м³ и более) для перевозки РАО практически невозможно обеспечить однородное по величине удельной активности заполнение контейнера. Но на предположении об однородности основывается метод характеристики удельной активности РАО в контейнере при измерениях с помощью коллимированного спектрометрического детектора. В программах некоторых разработчиков для расчета вводится уровень неоднородности распределения активности в контейнерах (как они выражают его численно, непонятно) [1,2]. На величине уровня неоднородности распределения основана оценка методической погрешности измерений. В работе эти соображения переведены в расчетные численные оценки для различных подходов к измерениям.

В проведенных исследованиях предложен подход для определения методической погрешности измерения активности (удельной активности) РАО в больших контейнерах, связанной с неоднородностью распределения активности в контейнере при различных способах проведения измерений. Подход к определению погрешности основан на Монте-Карло моделировании сигнала измерительного устройства при различном случайном заполнении контейнера с одинаковым уровнем случайной неоднородности активности (УСНА) и

вычислении ожидаемой методической ошибки измерений.

Определены методические ошибки при 1, 2, 4-кратных измерениях с разных сторон контейнера и при непрерывном вращении для различных УСНА. Показано, что ошибки последовательно уменьшаются для типичных параметров измерения содержания Cs-137 в контейнере КМЗ в 1,5, 2,5 и 3 раза по сравнению с однократным измерением с одной стороны. Для бетонного контейнера НЗК и контейнера КРАД ошибки также уменьшаются, но не так значительно. Вращение контейнера при измерениях – удобный способ и для процедуры измерений, и для уменьшения погрешности измерений. Сокращается время проведения измерений, не требуется юстировки устройства, перезапуска программы измерения спектра.

Для типичной неоднородности заполнения контейнера рассчитанные методические ошибки составляют от 90% (одно измерение) до 20% (вращение). Эти результаты должны учитываться при разработке методик измерений и представлении результатов измерений.

Постановка задачи

Измерение активности контейнеров A радиометрическим способом основано на формировании аппаратного спектра и определении скорости счета cr в пике полного поглощения энергетической линии радионуклида и последующего использования формулы:

$$A = C_{cal} \cdot cr. \quad (1)$$

Здесь C_{cal} – калибровочный коэффициент, который находят экспериментально или расчетным путем в предположении равномерного распределения активности по объему контейнера. Выбор этого приближения обусловлен тем, что априори отсутствует информация о характере расположения радионуклидов внутри измеряемых контейнеров, однако это и приводит к методической погрешности, которую предстоит оценить. В данном случае речь

идет о неопределенности измерений, обусловленной «неадекватностью контролируемому объекту (эффекту) измерительной модели, параметры которой принимаются в качестве измеряемых величин [3]».

Результирующее значение активности контейнера при многократных (многосторонних) измерениях определяется как среднеарифметическое значение:

$$\langle A \rangle_N = \frac{1}{N_m} \sum_{i=1}^{N_m} A_i = \frac{C_{cal}}{N_m} \sum_{i=1}^{N_m} cr_i,$$

где N_m – общее число измерений в рассматриваемом варианте (число обследуемых сторон контейнера $N_m = 1, 2, 4$). $A_i = C_{cal} \cdot cr_i$ – значение активности, полученное при измерении i -й стороны контейнера, cr_i – скорость счета при этом измерении. Для измерения при вращении результирующее значение активности может быть представлено в виде:

$$\langle A \rangle = C_r \langle cr \rangle_T,$$

где $\langle cr \rangle_T = \frac{1}{T} \int_0^T cr(t) dt$ – средняя скорость счета в пике полного поглощения за время измерения T , а C_r – калибровочный коэффициент для измерения при вращении, который находится для всех взаимных положений контейнера и детектора также в предположении равномерного распределения активности (при этом $C_r \neq C_{cal}$).

При многократных (многосторонних) измерениях по формуле:

$$\sigma_N = \sqrt{\frac{\sum_i (\langle A \rangle_N - A_i)^2}{(N_m - 1)}} \quad (2)$$

оценивают среднее квадратичное отклонение (СКО) измеренных значений A_i от среднеарифметического значения $\langle A \rangle_N$. Таким образом, эта величина характеризует разброс измеренных значений при конкретном измерении контейнера, а не погрешность (неопределенность) измерения, которая связана с понятием «истинного» значения активности. Этот параметр в большей

степени характеризует степень неоднородности в распределении активности в контейнере, а не отклонения от истинного значения $A_{ист}$, которое является оценкой этих измерений. Не следует путать это понятие со статистической погрешностью, обусловленной вероятностными (случайными) процессами, такими как излучение квантов источником или их регистрация детектором. Статистическую составляющую погрешности можно оценить в пуассоновском приближении по формуле:

$$\sigma_{stat} = \frac{C_{cal}}{N_m} \sqrt{\sum_i cr_i / T_i}, \quad (3)$$

где T_i – время, cr_i – скорость счета при измерении i -й стороны контейнера,

$\delta_{stat} = \sigma_{stat} / A = 1 / \sqrt{\sum_i n_i / T_i}$ – относительная статистическая погрешность.

В качестве примера в табл. 1 и 2 приведены результаты измерений активности РАО в нескольких контейнерах КРАД-3 разными способами, сделанные в рамках работ по выводу из эксплуатации объектов использования атомной энергии. В приведенных таблицах для результатов измерений, полученных при вращении, указана только статистическая неопределенность. Методическую неопределенность мы оценим позднее с использованием результатов моделирования.

Формула (3) дает оценку статистическому разбросу среднего арифметического значения активности этого контейнера при его измерении с N_m сторон. Чтобы понять это, можно привести следующий пример. Если провести большую серию четырехсторонних измерений одного и того же контейнера и для каждой серии получить среднеарифметические значения активности, то эти значения от серии к серии будут немного отличаться. Величину разброса этих среднеарифметических значений можно оценивать по формуле (3). Поэтому формула (3) дает оценку разбросу этих среднеарифметических значений.

Табл.1. Результаты радиометрических измерений контейнеров КРАД-3 каждой из четырех сторон.

Контейнер	1 сторона		2 сторона		3 сторона		4 сторона	
	$A_{Cs}, 10^5$ (Бк/кг)	$A_{Co}, 10^4$ (Бк/кг)						
№ 2814	0,235	0,226	0,371	0,72	0,748	1,59	0,467	0,856
№ 230	0,0986		0,0489		0,249		1,29	
№ 2807	0,0231		0,203		0,219		0,217	
№ 1039		1,20		0,732		0,754		1,17
№ 2919	0,0568		0,0763		0,0735		0,0739	

Табл.2. Результаты статистической обработки данных измерений КРАД-3 с различных сторон и измерений при вращении.

Контейнер	Среднее значение стороны (1+3)		Среднее значение стороны (1+2+3+4)		Вращение (5 мин)	
	$A_{Cs}, 10^5$ (Бк/кг)	$A_{Co}, 10^4$ (Бк/кг)	$A_{Cs}, 10^5$ (Бк/кг)	$A_{Co}, 10^4$ (Бк/кг)	$A_{Cs}, 10^5$ (Бк/кг)	$A_{Co}, 10^4$ (Бк/кг)
№ 2814	0,49±0,36	0,91±0,96	0,455±0,217	0,848±0,1	0,46±0,03	0,841±0,07
№ 230	0,17±0,11		0,42±0,58		0,27±0,02	
№ 2807	0,12±0,14		0,22±0,11		0,185±0,013	
№ 1039		0,98±0,32		0,96±0,25		0,92±0,07
№ 2919	0,065±0,012		0,070±0,009		0,062±0,005	

Если сравнить значения СКО σ_N (расчет по формуле (2) по данным табл.2) и статистической неопределенности σ_{stat} (расчет по формуле (3)), то оказывается, что $\sigma_{stat} \ll \sigma_N$ (отличаются, по крайней мере, на порядок). Тем не менее, это важный момент, который позволяет оптимизировать время экспозиции при измерениях.

Для случая измерения контейнера при вращении по сути мы имеем дело с однократным измерением, статистическая погрешность которого может в пуассоновском приближении оцениваться по формуле:

$$\sigma_{ep} = \frac{C_k}{T} \sqrt{\int_0^T cr(t) dt} = C_k \sqrt{\frac{\langle cr \rangle_T}{T}} \quad (4)$$

$$\delta_{ep} = \sigma_{ep} / A = \sqrt{\frac{I}{\langle cr \rangle_T T}} -$$

относительная статистическая погрешность. Обозначения используемых величин указаны выше.

Далее проведено численное моделирование измерения общей активности РАО в контейнере для выяснения влияния разных способов измерений на точность оценки активности.

Модель контролируемого объекта

Для ответа на поставленные вопросы была разработана математическая модель, основанная на методе Монте-Карло. Объектами исследования являлись транспортные контейнеры для РАО большого объема: металлические контейнеры типа КМЗ, КРАД-3 и бетонные контейнеры НЗК, неоднородно наполненные РАО [4]. Измерение осуществлялось спектрометрическим детектором на основе кристалла $LaBr_3$ размером $\varnothing 38 \times 38$ мм, помещенным в свинцовую защиту и коллиматор с углом раствора $\sim 45^\circ$. Детектор располагался на расстоянии 2,5 м от боковой поверхности контейнера при одностороннем и многостороннем измерениях, а также при измерениях с вращением. В качестве радионуклида, опре-

деляющего активность контейнера, рассматривался Cs-137. Матрица, содержащая радионуклид, – бетонный бой, плотность $1,7 \text{ г/см}^3$.

Для формирования неоднородностей в распределениях активности радионуклидов внутри контейнера его внутренний объем делился на одинаковые по размеру небольшие ячейки (например, для КМЗ – «кирпичики» размером $130 \times 130 \times 90 \text{ мм}$) в форме параллелепипеда в количестве $N_v = 1000$ штук. Этим ячейкам присваивались активности A_i таким образом, чтобы выполнялось условие:

$$A_{tot} = \sum_{i=1}^{N_k} A_i = \text{constant}, \quad (5)$$

где A_{tot} – суммарная активность РАО в контейнере, которая сохранялась постоянной для всех вариантов расчетов. N_k – число ячеек, содержащих радионуклиды ($1 \leq N_k \leq N_v$).

Различие вариантов распределений активности в контейнере сводилось к следующей процедуре. Сначала разыгрывалось случайное число ячеек N_k , в которых присутствовали

радионуклиды с активностью A_i ($i = 1, \dots, N_k$), а значения этих активностей A_i также разыгрывались случайным образом, но при этом так, чтобы выполнялось условие (5) для $A_{tot} = \text{constant}$. Такая процедура обеспечивает неоднородность распределения активности в контейнере и изменение распределения от варианта к варианту, но при этом общая активность сохранялась постоянной.

Более подробно различные способы моделирования неоднородности в распределении активности в контейнере и их влияние на методическую погрешность рассмотрены в Приложении.

Схема измерений, которая является основой для расчетной модели, представлена на рис.1. Рассчитываемой характеристикой являлась скорость счета в пике полного поглощения рассматриваемого нуклида cr , а через нее – активность контейнера, которая вычислялась сразу для 4-х вариантов измерений, т. е. для одностороннего, двухстороннего и четырехстороннего, а также для вращательного варианта (путем дискретного углового перемещения контейнера с мелким шагом) и последующего усреднения показаний детектора.

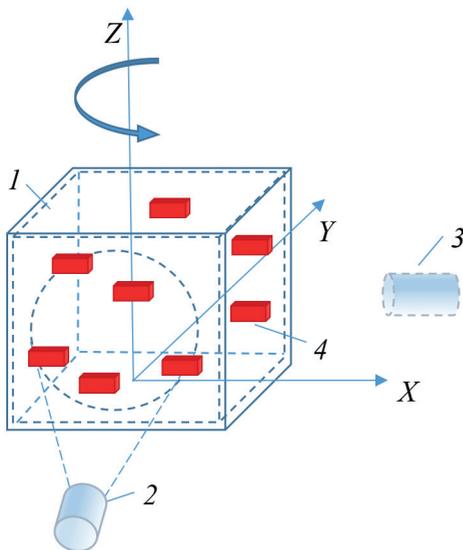


Рис.1. Схема измерения активности радионуклидов в контейнере. 1 – металлический контейнер типа КМЗ, 2 – коллимированный спектрометрический детектор, 3 – расположение детектора при измерении другой стороны, 4 – элемент ячейки («кирпич»), содержащий радионуклиды заданной активности. Ось Z – ось вращения.

Результаты расчетов. Контейнеры КМЗ

Первым рассмотренным контейнером был металлический контейнер типа КМЗ с внутренним размером (Д×Ш×В) $1300 \times 1300 \times 900 \text{ мм}$. По формуле (1) с калибровочными коэффициентами, рассчитанными в предположении равномерного распределения радионуклидов по объему контейнера, рассчитывалась общая «измеренная» активность контейнера. Следует отметить, что калибровочный коэффициент для вращающегося контейнера отличается от коэффициента при измерениях через боковую поверхность. По результатам расчетов проводились сравнения между показаниями детектора при измерении вращающегося контейнера

с показаниями одностороннего, двухстороннего и четырехстороннего измерений.

На рис.2 представлены результаты 150 «измеренных» значений активности контейнера, полученных при четырехсторонних измерениях и при вращении. Каждый порядковый номер измерения характеризуется своим индивидуальным распределением активности внутри контейнера при соблюдении условия (5).

Рис.2 наглядно показывает возможный разброс значений активностей, полученных разными способами. Однако для анализа этих способов измерений такое представление не совсем удачное. Для сопоставления разных способов измерений необходимо результаты представить в виде распределений (связано с понятием плотности распределения), а для этого нужно иметь большой набор данных таких измерений. Поэтому для получения этих распределений количество вариантов измерений было увеличено до 10^4 , и затем осуществлялась их сортировка по величине измеренной активности, что привело к результатам, представленным на рис.3. Как видно из этого

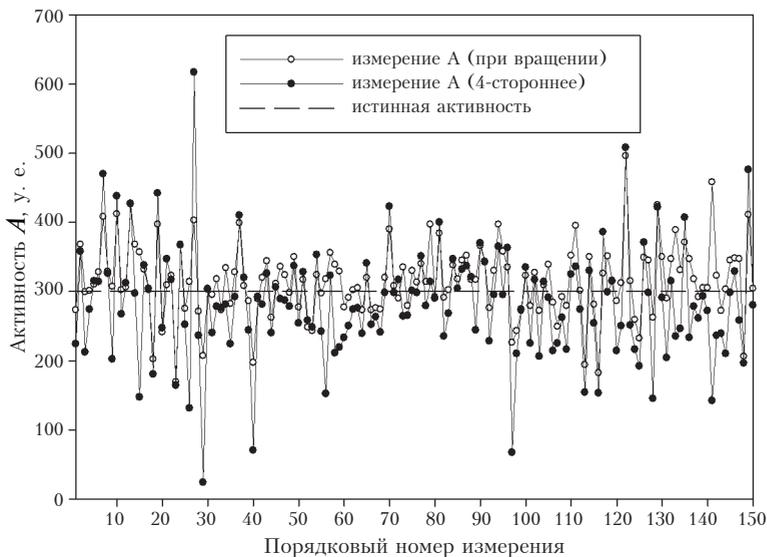


Рис.2. Значения активности радионуклида, полученные двумя способами: при вращении (○) и путем усреднения по данным измерений с 4-х сторон (●). Каждому порядковому номеру измерения соответствует своя случайная комбинация расположения активности в контейнере.

рисунка, некоторые случайные распределения активностей в контейнере могут приводить к результатам, отличающимся от истинного значения активности более чем в 3 раза.

Для сопоставления плотностей распределений различных способов измерений была осуществлена процедура сглаживания этих распределений путем аппроксимации функцией Лоренца. Это позволило более наглядно представить функции плотности распределения для различных способов измерения и сравнить между собой (рис.4). Для каждого способа измерения вычислялся параметр:

$$\sigma_M = \sqrt{\int_0^{A_{max}} (A - A_{ucm})^2 f(A) dA},$$

$$(\delta_M = \sigma_M / A_{ucm}), \quad (6)$$

характеризующий среднее квадратичное отклонение возможных измеренных значений активности от истинного значения, обусловленное погрешностью метода измерения. Значения параметра δ_M приведены на рис.3 и 4.

Значения этих параметров важны, т. к. они связаны с неопределенностью результата измерения, т. е. доверительным интервалом, внутри которого с заданной вероятностью находится истинное значение активности. Границы доверительного интервала определяются по формулам:

$$U_A^+ = \frac{\delta}{1 - \delta} A \quad \text{и} \quad U_A^- = \frac{\delta}{1 + \delta} A,$$

где $\delta = \sqrt{\delta_{stat}^2 + \delta_M^2}$, δ_{stat} при многократных измерениях находится по формуле (3), или по формуле (4) при вращении, δ_M — по формуле (6).

Практические измерения показали, что δ_M всегда много больше δ_{stat} и тогда $\delta \approx \delta_M$. Следует отметить, что при использовании значений δ_M ,

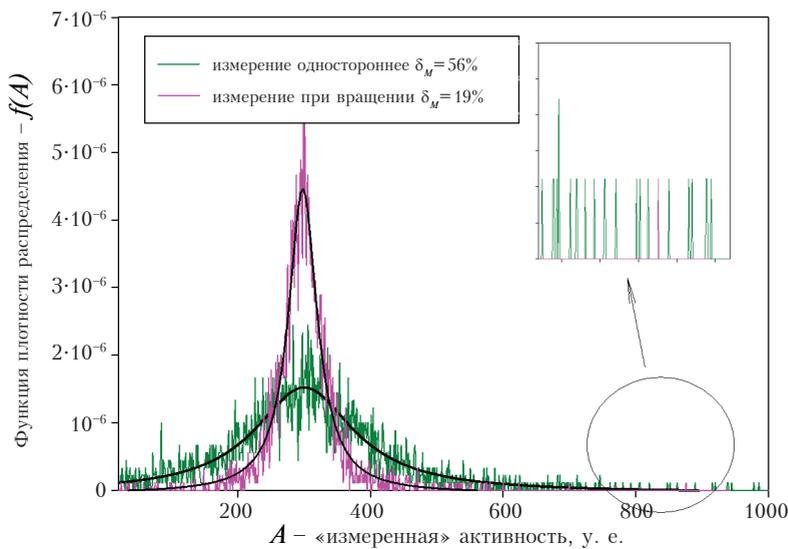


Рис.3. Функция плотности распределения значений активности для измерений с вращением (розовый) и односторонним измерением (зеленый). Линии черного цвета – аппроксимированные (сглаженные) зависимость функцией Лоренца. В правом верхнем углу представлен увеличенный фрагмент в области значений, когда измеренные активности на 300% превышают истинное значение.

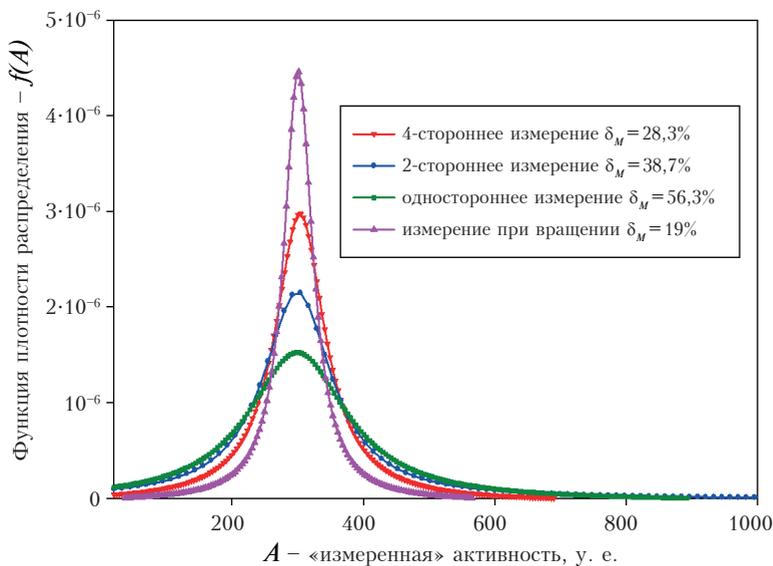


Рис.4. Сглаженные зависимости функции плотности распределения оцениваемой активности для четырех способов измерений. δ_M – значения относительных среднеквадратичных отклонений от истинного значения активности для представленных распределений.

рассчитанных по формуле (6) для указанных распределений рис.4, стандартная неопределенность, т. е. при доверительном интервале в одно СКО, будет соответствовать доверительной вероятности $P \approx 0,82$. Для расширенной неопределенности (для $P = 0,95$) доверительный интервал должен быть увеличен до двух СКО.

Контейнеры КРАД

Контейнеры КРАД-3.0 отличаются от КМЗ размерами и полезным объемом. В отличие от КМЗ, контейнеры КРАД обладают меньшей степенью симметрии, т. к. их размеры

Д×Ш×В равны 262×142×95 см. Поэтому при вращении две смежные стороны контейнера не эквивалентны между собой, что приводит к различным результатам измерений даже при равномерном распределении активности в контейнере. Это означает, что и калибровочные коэффициенты для измерений смежных сторон должны быть разными. Это обстоятельство не является проблемой при измерениях каждой из сторон, т. к. отдельное измерение нужно обрабатывать с различными калибровочными коэффициентами, а их будет только два (для продольного и поперечного вдоль контейнера измерений).

Рис.5. Значения активности радионуклида, полученные двумя способами: при вращении (красный) и при измерении с одной стороны (большая грань контейнера) (зеленый). Каждому порядковому номеру измерения соответствует свое случайное распределение активности в контейнере.

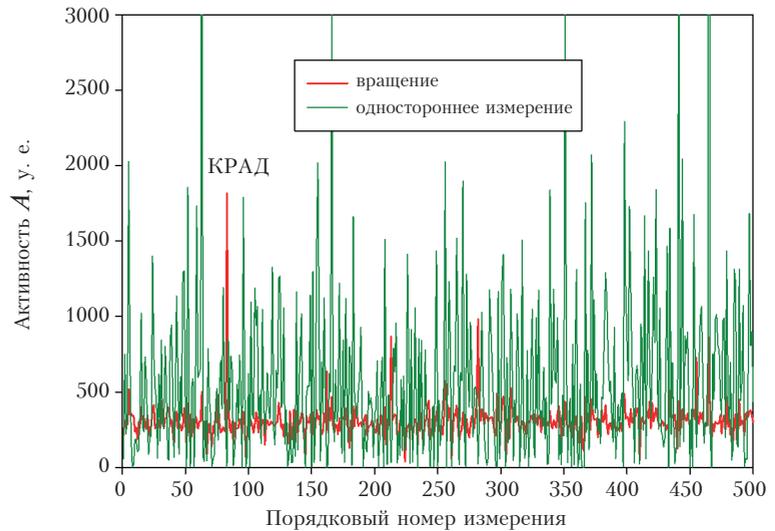
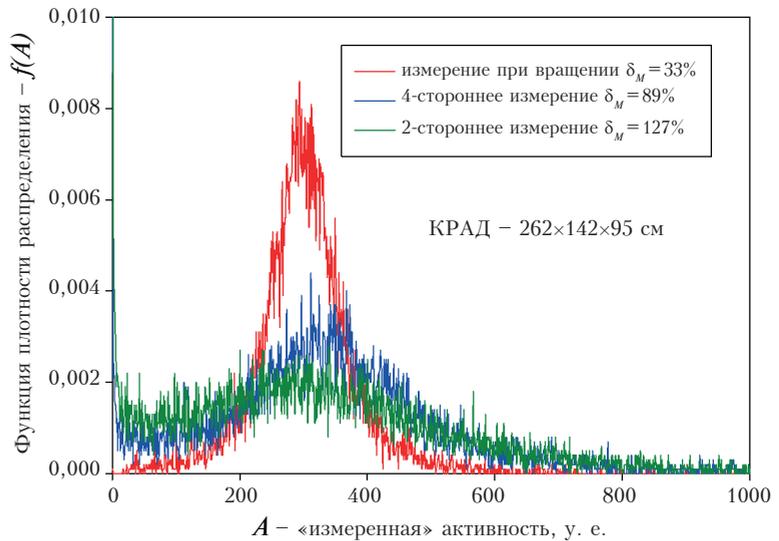


Рис.6. Функции плотности распределения значений активности для измерений с вращением (красный), усредненными данными 4-сторонних измерений (синий) и 2-сторонних измерений (зеленый).



Сложности возникают для измерений при вращении. Однако эту ситуацию можно упростить, используя усредненный калибровочный коэффициент.

На рис.5 показано как могут варьироваться значения измеренных активностей для двух способов: при вращении и для одностороннего измерения. Эти результаты в виде функций плотности распределений представлены на рис.6.

Из-за асимметричной формы контейнеров КРАД разброс измеренных значений активности указанными способами значительно отличается от результатов измерений контейнеров

КМЗ, на что указывают значения методической погрешности δ_M , приведенные на рис.6. Из этих данных следует, что методическая погрешность для контейнеров КРАД по сравнению с результатами для контейнеров КМЗ (рис.4) увеличивается примерно в 1,7 раза при измерениях при вращении, и почти в 3 раза для других способов измерений.

Контейнеры НЗК

Контейнеры НЗК имеют практически такие же внутренние размеры, как и контейнеры КМЗ, однако существенным отличием является толщина стенок, которая соответствует

15 см бетона. Это указывает на то, что ослабление регистрируемого излучения сильно зависит от ориентации контейнера относительно оси детектора (часть траекторий частиц отмечены красными линиями, рис.7), что приводит к заметному изменению чувствительности детектора при различных поворотах контейнера.

Если при измерениях контейнеров КРАД заметное изменение чувствительности детектора происходит за счет нарушения геометрической симметрии при различной ориентации контейнера, то в случае измерений НЗК это происходит за счет изменения ослабления квантов излучения в толстой стенке контейнера.

На рис.8 приведены результаты измерений активностей при вращении и одностороннем измерении (аналогично рис.5).

Полученные функции плотности распределения по данным измерений различным способом представлены на рис.9 с указанием относительной методической погрешности таких измерений. Относительная методическая погрешность для контейнера НЗК по отношению к контейнеру КМЗ увеличилась в ~2,5 раза для измерения с вращением, и в ~3 раза для остальных способов измерения. Это результат указанного выше изменения

чувствительности детектирования при различной ориентации контейнера.

Обсуждение

Полученные результаты моделирования можно применить для оценки методической неопределенности при различных способах измерений, проводимых на практике. В программном обеспечении для обработки данных измерений обычно постулируется, что неопределенность рассчитанной активности составляет не более 70%, если неоднородность распределения активности в контейнере не превышает 30% [5,6]. Используя полученные результаты, можно дать оценки методической составляющей неопределенности для разных подходов к измерениям на экспериментальной основе. Такой подход может применяться для измерений серии контейнеров с одинаковыми типами РАО и примерно одинаковой технологией заполнения контейнеров.

Для этого необходимо сделать экспериментальную оценку методической неопределенности по данным измерений с 4-х сторон. И эта неопределенность, уменьшенная или увеличенная, в соответствии с данными моделирования (рис.9) применяется для данных измерений различными способами для всей серии контейнеров.

В табл.3 приведены данные реальных измерений контейнеров НЗК. В табл.4 показаны результаты статистической обработки данных измерений с 4-х сторон, а данные измерений с 2-х сторон и измерений при вращении дополнены величинами неопределенности, выведенными на основе результатов 4-сторонних измерений соотношений.

Если загрузка контейнеров проводилась РАО одного типа с использованием одной технологии загрузки, методические неопределенности измерений должны быть близки для такой серии контейнеров. Тогда, проведя измерения для нескольких контейнеров с 4-х сторон и

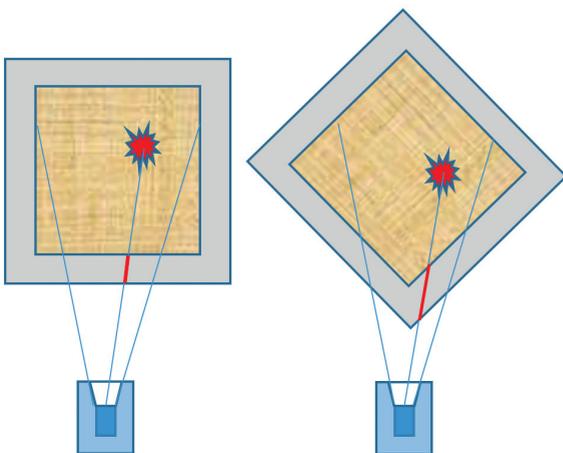


Рис. 7. Условная схема измерения активности контейнера НЗК при вращении в различные моменты времени.

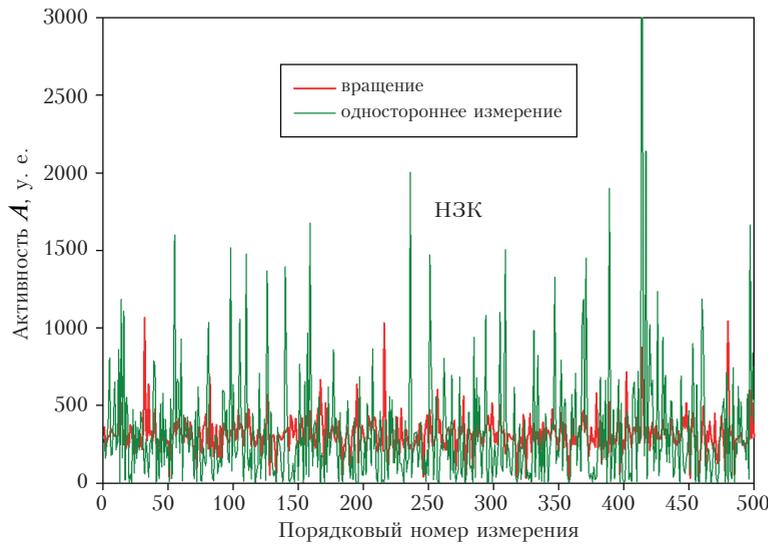


Рис.8. Значения активности радионуклида, рассчитанные для двух способов измерений: при вращении (красный) и при измерении с одной стороны (большая грань контейнера) (зеленый). Каждому порядковому номеру соответствует своя случайная комбинация расположения активности в контейнере.

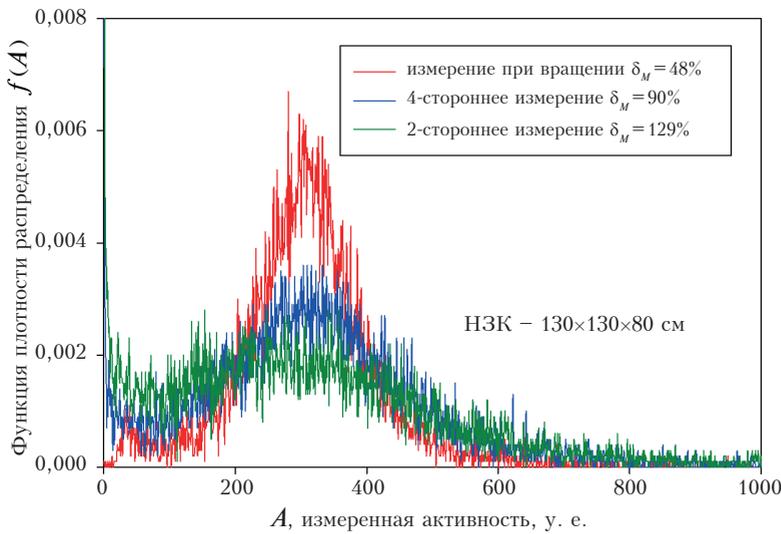


Рис.9. Функции плотности распределения значений активности для измерений с вращением (красный), усредненными данными 4-сторонних измерений (синий) и 2-сторонних измерений (зеленый).

оценив неопределенность, ее можно перенести на другие способы измерений (уменьшив или увеличив на соответствующий множитель).

Безусловно, на результаты оценки активности радионуклидов в контейнерах будет сказываться неоднородность РАО как по плотности, так и по типу материала. Однако при оценке активности с использованием формулы (1) калибровочный коэффициент C_{cal} выбирается с учетом средней плотности среды. Это осуществляется путем предварительных взвешиваний пустого и заполненного контейнера и вычислению средней плотности среды. Такая процедура эквивалентна гомогенизации среды,

что, как известно, является хорошей моделью в ситуации с мелкомасштабными флуктуациями случайно неоднородных сред.

Известно, что коэффициенты ослабления гамма-излучения определяются через массовый коэффициент поглощения и плотность среды. Поскольку массовые коэффициенты в области энергий от 0,3 до 3 МэВ для основных элементов слабо зависят от порядкового номера Z , а плотность гомогенизированной среды определяется при взвешивании, то тип матрицы контейнера учитывается автоматически, т. е. изменение химического состава слабо влияет на результат.

Табл.3. Результаты радиометрических измерений контейнеров НЗК с каждой из четырех сторон.

Контейнер НЗК	1 сторона		2 сторона		3 сторона		4 сторона	
	$A_{Cs}, 10^7$ (Бк/кг)	$A_{Co}, 10^5$ (Бк/кг)						
№ 7714	0,0	3,03	0,00	0,196	0,00	1,58	0,00	1,13
№ 6433	0,442	0,0282	0,331	0,00	0,222	0,024	0,155	0,269
№ 7738	0,0	5,36	0,00	2,74	0,00	2,64	0,00	5,82
№ 7743	0,265	2,50	0,104	0,00	0,11	0,00	0,098	0,178
№ 7751	0,444	0,148	0,985	0,428	1,09	0,046	0,811	0,023
№ 7735	0,0	0,342	0,0	0,149	0,00	0,131	0,00	0,495
№ 6471	1,97	11,3	2,04	1,27	2,64	0,405	2,08	3,88
№ 6078	1,60	1,02	2,93	1,49	1,49	0,885	1,00	1,15

Табл.4. Результаты статистической обработки данных измерений с 4-х сторон и использование их для оценки погрешности измерений при вращении и измерений с 2-х сторон.

Контейнер НЗК	Среднее значение сторон 1+3		Среднее значение для сторон 1+2+3+4		Вращение (5 мин)	
	$A_{Cs}, 10^7$ (Бк/кг)	$A_{Co}, 10^5$ (Бк/кг)	$A_{Cs}, 10^7$ (Бк/кг)	$A_{Co}, 10^5$ (Бк/кг)	$A_{Cs}, 10^7$ (Бк/кг)	$A_{Co}, 10^5$ (Бк/кг)
№ 7714	0,0	2,31±1,03	0,0	1,48±1,18	0,0	1,2±0,6
№ 6433	0,33±0,16	0,026±0,003	0,288±0,126	0,080±0,12	0,327±0,065	0,058±0,06
№ 7738	0,0	4,0±1,9	0,0	4,14±1,68	0,0	4,32±0,85
№ 7743	0,19±0,11	1,25±1,76	0,144±0,08	0,670±1,22	0,133±0,04	0,0
№ 7751	0,77±0,46	0,097±0,07	0,833±0,283	0,161±0,185	0,898±0,146	0,31±0,1
№ 7735	0,0	0,24±0,15	0,0	0,279±0,172	0,0	0,12±0,09
№ 6471	2,31±0,47	5,9±7,7	2,18±0,31	4,21±4,95	3,67±0,16	4,3±2,5
№ 6078	1,55±0,08	0,952±0,095	1,76±0,83	1,14±0,26	2,67±0,44	1,34±0,13

Таким образом, проведенное моделирование не только дает способ сравнения методической неопределенности данных измерений для разных уровней неоднородности заполнения контейнеров, разных методов проведения измерений, но и позволяет использовать эти соотношения в практических работах.

Выводы

При отсутствии априорной информации о распределении радионуклидов внутри контейнеров используют четыре способа измерения активности, что приводит к различной погрешности метода измерения δ_M . Результаты моделирования для одностороннего, двухстороннего, четырехстороннего измерений или при вращении показывают, что погрешность

метода измерения составляет ~ 60, 40, 30 и 20% при стандартной оценке неопределенности измерений (доверительная вероятность $P \approx 0,82$). Поэтому способ измерения, основанный на вращении, имеет преимущество, т. к. разброс измеренных значений активности контейнера существенно меньше и может отличаться от других подходов в 1,5, 2 и даже 3 раза. Для оценки расширенной неопределенности измерений (для $P = 0,95$) погрешность метода измерения δ_M удваивается.

Как правило, при разумных временах экспозиции (порядка 5 мин) статистическая погрешность измерения любым из выше указанных способов измерения существенно меньше погрешности метода измерения для многих нуклидов (^{137}Cs , ^{60}Co). Это означает, что

время измерения при вращении может быть сопоставимо со временем измерения любой из сторон контейнера. Таким образом, это приводит к тому, что время экспозиции при вращении может быть в 4 раза меньше, чем при четырехстороннем измерении, и в 2 раза, чем при двухстороннем измерении. Использование измерения, основанного на вращении, может существенно увеличить производительность контроля контейнеров и повысить точность измерения. В дополнение к выводам, приведенным для контейнера КМЗ, можно добавить,

что погрешности метода измерения для контейнеров КРАД составляют 127, 89 и 33% при 2-стороннем, 4-стороннем измерениях и при вращении, соответственно, а для контейнеров НЗК – 129, 90 и 48%. Следует отметить, что для любых контейнеров способ измерения с вращением дает наименьший разброс значений измеренной активности (минимальную погрешность метода измерения), а это означает, что наиболее достоверный результат получается при измерениях с вращающимся контейнером.

Приложение

В используемой модели степень неоднородности распределения активности в контейнере зависит от числа ячеек, содержащих радиоактивные отходы (радионуклиды). Это число может разыгрываться в разных предположениях об их распределении, например, из равномерного распределения или какого-либо другого. В нашей модели рассматривались распределения, которые описывались функцией:

$$f(N/N_v) = n \left(1 - \frac{N}{N_v} \right)^{n-1}, \quad (П1)$$

где N – число ячеек, содержащих радионуклиды, N_v – общее число ячеек в контейнере, n – параметр распределения ($n = 1, 2, \dots, 10$).

На рис.П1 представлены в графическом виде эти распределения для различных значений параметра n . Из этого рисунка видно, что при больших значениях параметра n количество (доля) загрязненных ячеек уменьшается при их розыгрыше, что создает большую неоднородность в распределениях активности в контейнере. Чем выше степень неоднородности активностей

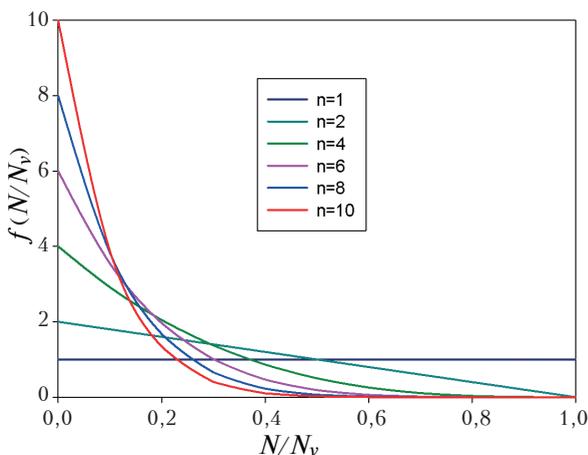


Рис.П1. Функции плотности распределения для случайной величины N при различных параметрах n .

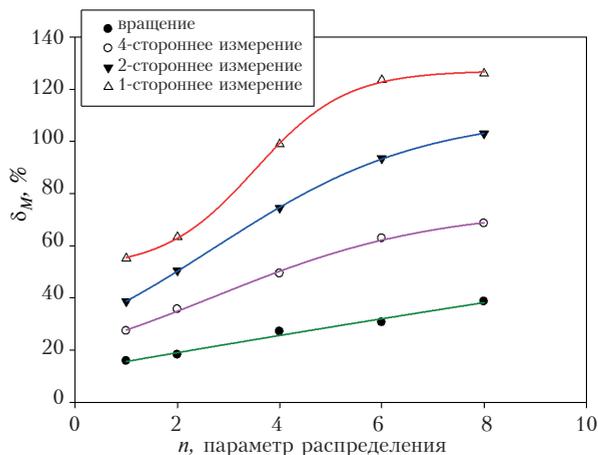


Рис.П2. Зависимость методической погрешности измерения δ_M от степени неоднородности активности в контейнере, выраженной через параметр распределения n .

в контейнере, тем выше методическая погрешность при измерениях δ_M . На рис.П2 показано, как изменяются значения δ_M от параметра n для различных способов измерения контейнеров.

Как видно из рис.П2, уже для параметра распределения $n > 4$, δ_M превышает 100% ($\delta_M > 1$) для некоторых способов измерения, что приводит к трудностям корректной оценки доверительных интервалов неопределенности измерения U^+ , т. к.

$$U_A^+ = \frac{\delta_M}{1 - \delta_M} A.$$

Рассмотрим причину возникновения этой ситуации. Значения $\delta_M > 1$ возникают для несимметричных распределений функции плотности распределения. Функции плотности распределения, соответствующие измерениям контейнера при вращении, как правило, имеют симметричную форму. Однако если перейти к однократному (одностороннему) измерению контейнера, то нарушается симметрия и функция плотности распределения уже выглядит так, как показано на рис.П3.

По определению $\sigma_M^2 = \int_0^{A_{max}} (A - A_{ucm})^2 f(A) dA$, тогда представим этот интеграл в виде:

$$\sigma_M^2 = \int_0^{A_{max}} (A - A_{ucm})^2 f(A) dA = \int_0^{A_{ucm}} (A - A_{ucm})^2 f(A) dA + \int_{A_{ucm}}^{A_{max}} (A - A_{ucm})^2 f(A) dA = (\sigma_M^-)^2 + (\sigma_M^+)^2.$$

При этом обозначим $\delta_M = \sigma_M / A_{ucm}$, $\delta_M^+ = \sigma_M^+ / A_{ucm}$ и $\delta_M^- = \sigma_M^- / A_{ucm}$.

При таком определении параметров δ_M^+ и δ_M^- удастся избежать некорректных значений границ доверительных интервалов. Приведенные примеры указывают на то, что при несимметричных распределениях требуется другой подход.

Из данных рис.П2 следует, что самые неблагоприятные ситуации возникают, когда параметр n лежит в пределах от 6 до 10 при реализации одностороннего и 2-стороннего измерений.

В табл.П1 сведены данные значений δ_M , δ_M^+ и δ_M^- , рассчитанные для параметра $n = 6$. Там же указаны значения относительных неопределенностей, через которые рассчитываются границы доверительных интервалов. В этой таблице серой областью выделены случаи, для которых реализовать оценку доверительных интервалов практически невозможно из-за ситуации, когда $\delta_M \geq 1$.

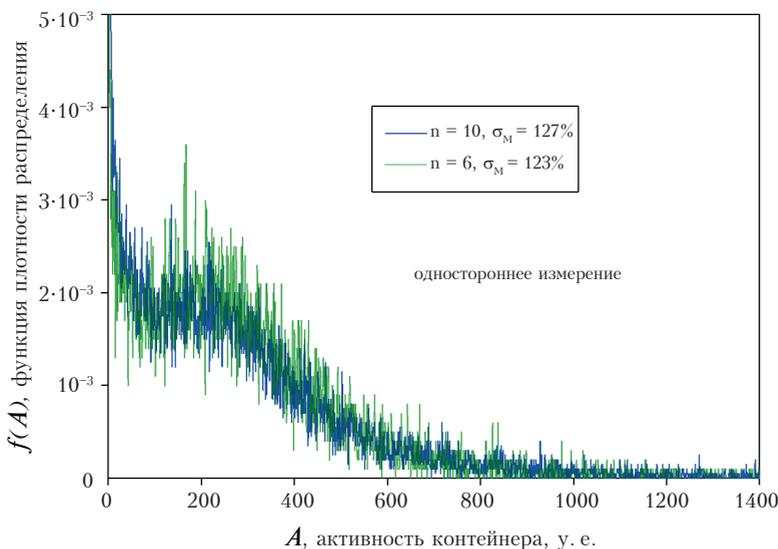


Рис.П3. Функция плотности распределения активности в контейнере при одностороннем измерении контейнера.

Табл. П1.

Способ измерения контейнер КМЗ	δ_M	δ_M^+	δ_M^-	$u_{\delta}^+ = \frac{\delta_M}{I - \delta_M}$	$u_{\delta}^- = \frac{\delta_M}{I + \delta_M}$	$u_{\delta_M^+}^+ = \frac{\delta_M^+}{I - \delta_M^+}$	$u_{\delta_M^-}^- = \frac{\delta_M^-}{I + \delta_M^-}$
Одностороннее	1,235	0,499 (0,40 δ_M)	1,130 (0,91 δ_M)	—	0,526	0,996	0,531
2-х стороннее	0,935	0,411 (0,44 δ_M)	0,840 (0,90 δ_M)	14,3846	0,483	0,698	0,457
4-х стороннее	0,629	0,329 (0,52 δ_M)	0,535 (0,85 δ_M)	1,6954	0,386	0,490	0,349
Вращение	0,307	0,174 (0,57 δ_M)	0,253 (0,82 δ_M)	0,4430	0,235	0,211	0,202

Табл. П2.

Способ измерения контейнера КМЗ	$u_{\delta_M^+}^+ = \frac{\delta_M^+}{I - \delta_M^+}$	$u_{\delta_M^-}^- = \frac{\delta_M^-}{I + \delta_M^-}$	Доверительная вероятность $P_{I\delta_M^\pm}$	Доверительная вероятность $P_{2\delta_M^\pm}$
Одностороннее	0,996	0,531	0,59	0,94
2-х стороннее	0,698	0,457	0,66	0,89
4-х стороннее	0,490	0,349	0,67	0,89
Вращение	0,211	0,202	0,71	0,91

Однако определенные в табл.П1 значения δ_M^+ и δ_M^- дают возможность по формулам

$$U_A^+ = \frac{\delta_M^+}{I - \delta_M^+} A_{изм} \quad \text{и} \quad U_A^- = \frac{\delta_M^-}{I + \delta_M^-} A_{изм} \quad (П2)$$

рассчитать границы доверительного интервала. Но для этого еще нужно определить какой доверительной вероятности соответствуют эти границы.

Определить такую вероятность можно, если известна функция распределения:

$$F(A) = \int_0^A f(A') dA'.$$

Типичный вид функций $f(A)$ показан на рис.П3, а рассчитанные для них функции распределения приведены на рис.П4. Таким образом, доверительная вероятность будет определяться по формуле:

$$P_{I\delta_M^\pm} \equiv P(A_1 < A < A_2) = F(A_2) - F(A_1),$$

где $A_1 = A_{исп}(I - \delta_M^-)$ и $A_2 = A_{исп}(I + \delta_M^+)$. Соответственно для расширенного доверительного интервала $P_{2\delta_M^\pm}$ будет рассчитываться по тем же зависимостям, но для $A_1 = A_{исп}(I - 2\delta_M^-)$ и $A_2 = A_{исп}(I + 2\delta_M^+)$.

Рассчитанные таким образом доверительные вероятности приведены в табл.П2. Из таблицы следует, что в среднем для всех способов измерений доверительная вероятность $P_{I\delta_M^\pm} \approx 0,6 - 0,7$, а для $P_{2\delta_M^\pm} \approx 0,9$. Однако доверительный интервал, соответствующий вероятности $P_{2\delta_M^\pm}$, становится нереально велик для одностороннего и двухстороннего измерений, поэтому можно ограничиться оценкой для случая доверительной вероятности $P_{I\delta_M^\pm}$.

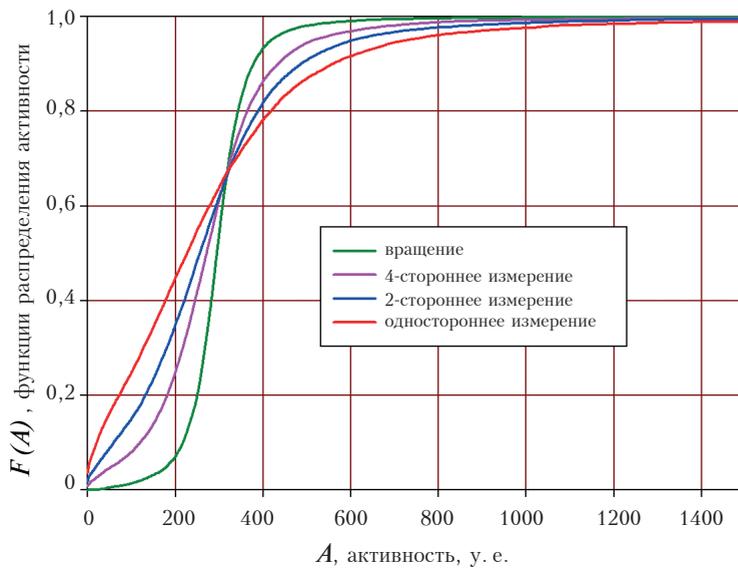


Рис.П4. Функции распределения активности, измеряемой различными способами, при истинном значении активности 300 у.е.

Таким образом, основные параметры для оценки доверительных интервалов можно взять из таблиц П1 и П2, т. к. они рассчитаны для наиболее реалистичного случая, когда $n = 6$. Как правило, радиоактивные отходы распределены в контейнере достаточно неоднородно, их объемная доля в среднем составляет порядка 15–30%. Это соответствует случаю, когда параметр n принимает значения от 3 до 7. Если за основу взять параметр $n = 6$, то всю информацию по оценке точности результатов измерений можно почерпнуть из табл.П2 с дальнейшим использованием формул (П2).

Литература

1. Методика измерений. Определение удельной и суммарной активности гамма-изучающих радионуклидов в упаковках с радиоактивными отходами на установке гамма-спектрометрической мобильной ISOCS. МИ-161-10.
2. Методика измерений активности (удельной активности) радионуклидов в закрытых контейнерах с компактированными твердыми или отвержденными отходами с применением полупроводникового гамма-спектрометра CANBERRA с программным обеспечением ISOCS. Свидетельство об аттестации № 487/210-(01.00250-2008)-2013.
3. Методики радиационного контроля. Общие требования. МИ 2453-2000. ГНМЦ (ВНИИФТРИ).
4. [http: 345 mz/kontejneryi-dlya-rao](http://345.mz/kontejneryi-dlya-rao) (дата обращения: 01.07.2024).
5. Методика измерений произвольно распределенной активности гамма-излучающих радионуклидов в контейнерах с помощью гамма-спектрометрического комплекса с программным обеспечением семейства SpectraLine. Свидетельство об аттестации № 487-RA.RU.311243-2018/450.034-661 от 8 февраля 2018.
6. Дорофеев А.Н., Зиннуров Б.С., Варлаков А.П., Германов А.В., Ивлиев М.В., Чаузова М.В., Калмыков С.Н., Петров В.Г. Реализация единства измерений характеристик РАО при передаче на хранение // Радиоактивные отходы. 2023. № 2(23). С. 8-20. DOI: 10 .25283/2587-9707-2023-2-8-20.

Estimation of the Methodological Error of Measuring Radioactive Waste Activity Using Different Methods for Large-Volume Transport Containers

Potapov Victor, Simirskiy Yuriy, Ivanov Oleg, Semin Iliya, Stepanov Vyacheslav, Gromov Nikolay, Stepanov Alexey (National Research Center «Kurchatov Institute», Moscow, Russia)

Abstract. The article describes a method for determining the methodological error in measuring the activity of radioactive waste in containers of various types. Within the framework of the mathematical model, which takes into account the uniformity of the distribution of nuclides in the container, an assessment was made of the value of methodological error when choosing measurements using various methods using a spectrometric system with a collimated detector. The obtained results can be used in development of methods for measuring containers before sending radioactive waste for disposal to specialized organizations.

Keywords: *decommissioning, radioactive waste, Monte Carlo method.*

В.Н.Потапов (д.ф.-м.н., в.н.с.), Ю.Н.Симирский (к.х.н., в.н.с.), О.П.Иванов (д.ф.-м.н., нач. отд.), И.А.Семин (вед.инж.), А.В.Степанов (к.ф.-м.н., с.н.с.), Н.Н.Громов (инж.-иссл.), В.Е.Степанов (к.ф.-м.н., зам.нач.отд.) – НИЦ «Курчатовский институт», г. Москва

Контакты: тел.: +7-499-1969542, olegivanov@mail.ru