

О. В. Михайлов

Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, вул. Кірова, 36а, Чорнобиль, 07270, Україна

Результати порівняльної оцінки алгоритмів розрахунку коефіцієнтів масштабування (scaling factors) для радіонуклідів, що важко вимірюються у відходах ЧАЕС, на прикладі ^{241}Am

Ключові слова:

радіоактивні відходи,
Чорнобильська АЕС,
питома активність,
мінімально детектована
активність,
радіонукліди, що важко вимірюються,
реперні радіонукліди,
коефіцієнт масштабування

Проведено тестування і порівняльний аналіз відомих алгоритмів розрахунку коефіцієнтів масштабування (КМ), які використовуються в системах поводження з радіоактивними відходами країн світу з розвинутим ядерним паливним циклом. Досліджено також застосування методу оцінки максимальної правдоподібності (maximum likelihood estimation), що дає змогу шляхом відновлення нормального закону розподілу скорегувати значення середнього вмісту забруднювача відповідно до ймовірності появи кожного з результатів вимірювань. Можливості обраних алгоритмів з точки зору точності відтворення статистичних показників вихідних масивів експериментальних результатів із застосуванням відповідних значень КМ було вивчено на трьох прикладах вибірок даних щодо питомої активності (вмісту) ^{241}Am в історичних твердих радіоактивних відходах (ТРВ) Чорнобильської АЕС. Частка цензурованих результатів у вигляді $< \text{МДА}$ (менше мінімально детектованої активності) становила 18, 42 і 55%. Усі досліджені алгоритми ранжовані за розробленою кількісною шкалою оцінки прийнятності (надійності) кожного з них для паспортизації активності радіонуклідів, що важко вимірюються, у складі упаковок з ТРВ Чорнобильської АЕС. Оцінено вплив додавання до значущих результатів цензурованих даних на точність відтворення вихідного спектра експериментальних результатів за допомогою протестованих алгоритмів.

Вступ

Відповідно до критеріїв прийняття на захоронення [1] кожна партія (упаковка) твердих радіоактивних відходів (ТРВ), що надходить від Чорнобильської атомної електростанції (ЧАЕС), повинна пройти контроль з метою паспортизації (визначення питомої та сумарної активності) більше, ніж 20 радіонуклідів. Більша частина з них належить до альфа- та бета-випромінюючих нуклідів, що важко вимірюються (РВВ), і активність яких неможливо визначити безпосередньо в упаковці. В англійській літературі, наприклад у [2–7], такі нукліди називають difficult-to-measure

(DTM) nuclides. Для їхнього визначення Міжнародне агентство з атомної енергії (МАГАТЕ) рекомендує застосовувати scaling factors (SF), які, залежно від редакції перекладу з англійської, називають коефіцієнтами радіонуклідного вектора, масштабуючими коефіцієнтами або коефіцієнтами масштабування (КМ) [7–9]. Методологія застосування КМ базується на існуванні стійкої кореляції між активністю різних радіонуклідів, що напрацьовуються одночасно в ході кампанії реактора і забруднюють матеріали, які після завершення циклу їхнього використання відносять до радіоактивних відходів (РАВ). На практиці КМ установлюють за результатами спеціального дослід-

© О. В. Михайлов, 2021

ження, яке передбачає відбір зразків ТРВ, проведення лабораторних вимірювань питомої активності радіонуклідів в їхньому складі та статистичний аналіз отриманих даних з метою встановлення параметрів функціональної залежності між активністю РВВ і реперних нуклідів (РР), що легко можуть бути виміряні безпосередньо в упаковці з ТРВ [3–10].

ТРВ ЧАЕС, які потребують радіологічної характеристики, є сумішшю різних матеріалів, забруднених у період нормальної роботи ЧАЕС (до аварії 4-го енергоблока в 1986 р.) і які до теперішнього часу зберігалися у спеціальному сховищі ЧАЕС [7, 8]. Перші результати вивчення радіонуклідного складу відходів показали, що застосування стандартних процедур, рекомендованих МАГАТЕ для визначення КМ, не викликає будь-яких ускладнень для матеріалів з високими рівнями радіоактивного забруднення. Однак для цілої низки РВВ, що належать до паспортизації, дані лабораторного контролю виявилися проблемними в тому сенсі, що склалися переважно або повністю з результатів вимірювань у вигляді < МДА (менше мінімально детектованої активності). Дані щодо вмісту ^{241}Am у відходах не є винятком. МАГАТЕ рекомендує для такого типу експериментальних даних застосувати метод середньої активності (mean activity method, МСА) [3]. Це певним чином вирішує проблему, але оцінка вмісту РВВ з використанням КМ, розрахованих за МСА, призводить до суттєвого завищення його паспортної активності в упаковці з відходами [3, 5, 7].

Якщо визначення вмісту окремих радіонуклідів у РАВ зумовлює складнощі, МАГАТЕ рекомендує для їхньої оцінки скористатися теоретично можливими співвідношеннями між активністю РВВ і РР [3]. Однак для експлуатаційних ТРВ ЧАЕС, що накопичувалися протягом тривалого часу і потім без сортування відправлялися на зберігання у сховище, практично неможливо врахувати в моделі розрахунку всі особливості формування спектра радіонуклідного забруднення матеріалів.

В іншій сфері діяльності, пов'язаній з визначенням вмісту різних забруднювачів в об'єктах довкілля, існують аналогічні проблеми з обробкою невизначених (nondetectable — ND) результатів вимірювань. Саме так, у вигляді ND, у лабораторних звітах відображають результати вимірювань, в яких вміст забруднювача, що досліджувався, виявився нижчим за значення межі детектування використаного обладнання. В англійській літературі можна зустріти такі скорочені назви межі детектування, як DL (detection

limit) або LD/LOD (limit of detection) залежно від того, який синонім цього терміну використовується. За визначенням DL є аналогом поняття МДА, що застосовується у звітах лабораторних досліджень вмісту радіонуклідів в об'єктах довкілля або в результатах, що формуються засобами автоматичних систем радіаційного контролю.

Для вибірок даних, що включають ND результати, рекомендують застосовувати так звані методи цензурування (censoring), з яких найбільш відомими є методи Коена (Cohen's method) і Айчисона (Aitchison's method) [11–14]. Алгоритми методів побудовані на заміні (цензуруванні) ND результатів на величину DL (або 0, $DL/\sqrt{2}$, $DL/2$) і визначенні нового положення центру розподілу випадкових даних з урахуванням доданих результатів [12–14]. Найбільш потужним інструментом обробки цензурованих даних визнано метод оцінки максимальної правдоподібності (maximum likelihood estimation, MLE). Метод MLE дозволяє шляхом відновлення нормального закону розподілу випадкових даних найбільш точно скорегувати значення середнього вмісту забруднювача відповідно до ймовірності появи кожного з результатів вимірювань [13, 14]. Цей алгоритм найбільш складний і потребує використання персонального комп'ютера з програмним забезпеченням, призначеним для роботи з електронними таблицями даних [14].

Таким чином, для експериментальних даних з невизначеними результатами вимірювань методи їхнього математичного аналізу існують та успішно використовуються. Але в практиці радіологічної характеристики ТРВ ЧАЕС результати у вигляді < МДА ігноруються або залучаються для встановлення КМ тільки за алгоритмом МСА. Такий підхід дає можливість вирішити проблему, але його застосування призводить у кінцевому підсумку до завищення питомої та сумарної активності РВВ в упаковках відходів, що направляються до захоронення. Тому пошук і тестування альтернативних алгоритмів визначення КМ, використання яких могло б привести до отримання більш точних значень паспортної активності РВВ у партіях відходів, залишається актуальним.

Метою цієї роботи є оцінка алгоритмів визначення коефіцієнтів масштабування, що використовуються у світовій практиці поводження з РАВ, з точки зору прийнятності їхнього застосування для паспортизації активності РВВ у складі упаковок з ТРВ ЧАЕС на прикладі вибірок лабораторних даних щодо вмісту ^{241}Am у відходах з різною часткою невизначених результатів (< МДА).

Об'єкти та методика досліджень

Об'єктом наших досліджень є питома активність (вміст) ^{241}Am і ^{137}Cs в ТРВ ЧАЕС, представницькі зразки яких були відібрані в ході спеціального дослідження [8]. За результатами проведеного аналізу для ^{241}Am було встановлено наявність значної кількості даних, декларованих у лабораторному звіті у вигляді < МДА. Для тестування різних алгоритмів визначення КМ на прикладі ^{241}Am і його РР ^{137}Cs було сформовано три вибірки даних (табл. 1–3) з часткою ND результатів (вміст ^{241}Am < МДА), яка дорівнювала 18, 42 та 55 % і відповідала одному з діапазонів їхніх значень, що зазвичай розглядають при виборі методу цензурування: до 20 %, від 20 до 50 % і вище 50 % [11–14].

Вибір переліку алгоритмів розрахунку КМ для тестування базувався на тому, що в більшості країн з розвинутим ядерним паливним циклом як КМ (SF) використовують середньоарифметичне значення відношення вміст РВВ / вміст РР (наприклад, Японія, Словенія та Великобританія) або середньогометричне (логарифмічне) значення цього відношення (наприклад, Бразилія, Канада, Франція, Республіка Корея, Італія, Іспанія, Швеція та США) [3]. У таких

країнах, як Німеччина, Угорщина, Литва, Мексика та Словаччина, для паспортизації активності РВВ використовують результати регресійного аналізу логарифмів вмісту РВВ і РР [3].

Враховуючи вищезгадане, для порівняльного тестування та подальшої оцінки прийнятності їхнього застосування для паспортизації РВВ були обрані наступні алгоритми розрахунку КМ.

Алгоритм А — установлення КМ за результатами оцінки середнього арифметичного значення відношення вміст РВВ / вміст РР (МСА): варіант А1 — за всіма результатами, включно з даними у вигляді < МДА для ^{241}Am після їхньої заміни (цензурування) на значуще число, що дорівнює заявленому у звіті значенню МДА; варіант А2 — тільки за значущими результатами вимірювань для ^{241}Am (без додавання цензурованих даних).

Алгоритм В — установлення КМ за результатами оцінки середнього геометричного значення відношення вміст РВВ / вміст РР (тільки для значущих результатів вимірювань ^{241}Am).

Алгоритм С — установлення КМ за результатами оцінки середнього геометричного значення відношення вміст РВВ / вміст РР, використовуючи метод

Таблиця 1. Вибірка даних 1

Номер зразка	Вміст, Бк/кг	
	^{137}Cs	^{241}Am
1	$5,80 \cdot 10^2$	16,0
2	$1,00 \cdot 10^4$	20,0
3	$6,90 \cdot 10^3$	97,0
4	$1,70 \cdot 10^4$	$1,20 \cdot 10^2$
5	$8,40 \cdot 10^3$	$1,60 \cdot 10^2$
6	$3,50 \cdot 10^4$	$9,50 \cdot 10^2$
7	$5,80 \cdot 10^4$	$1,00 \cdot 10^3$
8	$1,1 \cdot 10^5$	$3,90 \cdot 10^3$
9	$2,40 \cdot 10^5$	$5,10 \cdot 10^3$
10	$3,74 \cdot 10^4$	$5,53 \cdot 10^2$
11	$2,39 \cdot 10^4$	$3,73 \cdot 10^2$
12	$4,32 \cdot 10^3$	$1,03 \cdot 10^2$
13	$5,28 \cdot 10^3$	99,6
14	$3,42 \cdot 10^4$	$2,73 \cdot 10^2$
15	$1,00 \cdot 10^3$	<10,0
16	$1,40 \cdot 10^3$	<10,0
17	$1,60 \cdot 10^2$	<10,0

Таблиця 2. Вибірка даних 2

Номер зразка	Вміст, Бк/кг	
	^{137}Cs	^{241}Am
1	$5,80 \cdot 10^2$	16,0
2	$1,00 \cdot 10^4$	20,0
3	$1,70 \cdot 10^4$	$1,20 \cdot 10^2$
4	$8,40 \cdot 10^3$	$1,60 \cdot 10^2$
5	$3,50 \cdot 10^4$	$9,50 \cdot 10^2$
6	$5,80 \cdot 10^4$	$1,00 \cdot 10^3$
7	$1,10 \cdot 10^5$	$3,90 \cdot 10^3$
8	$2,40 \cdot 10^5$	$5,10 \cdot 10^3$
9	$3,74 \cdot 10^4$	$5,53 \cdot 10^2$
10	$5,28 \cdot 10^3$	99,6
11	$3,42 \cdot 10^4$	$2,73 \cdot 10^2$
12	$1,00 \cdot 10^3$	<10,0
13	$1,40 \cdot 10^3$	<10,0
14	$1,60 \cdot 10^2$	<10,0
15	$7,00 \cdot 10^4$	<10,0
16	$2,10 \cdot 10^3$	<10,0
17	$2,00 \cdot 10^2$	<10,0
18	$1,00 \cdot 10^3$	<10,0
19	$1,60 \cdot 10^3$	<10,0

Таблиця 3. Вибірка даних 3

Номер зразка	Вміст, Бк/кг	
	^{137}Cs	^{241}Am
1	$5,80 \cdot 10^2$	16,0
2	$1,70 \cdot 10^4$	$1,20 \cdot 10^2$
3	$8,40 \cdot 10^3$	$1,60 \cdot 10^2$
4	$3,50 \cdot 10^4$	$9,50 \cdot 10^2$
5	$5,80 \cdot 10^4$	$1,00 \cdot 10^3$
6	$1,10 \cdot 10^5$	$3,90 \cdot 10^3$
7	$3,74 \cdot 10^4$	$5,53 \cdot 10^2$
8	$2,39 \cdot 10^4$	$3,73 \cdot 10^2$
9	$4,32 \cdot 10^3$	$1,03 \cdot 10^2$
10	$3,42 \cdot 10^4$	$2,73 \cdot 10^2$
11	$1,00 \cdot 10^3$	<10,0
12	$1,40 \cdot 10^3$	<10,0
13	$1,60 \cdot 10^2$	<10,0
14	$7,00 \cdot 10^4$	<10,0
15	$2,10 \cdot 10^3$	<10,0
16	$6,80 \cdot 10^2$	<10,0
17	$2,00 \cdot 10^2$	<10,0
18	$1,00 \cdot 10^3$	<10,0
19	$1,60 \cdot 10^3$	<10,0
20	$2,90 \cdot 10^3$	<10,0
21	$1,80 \cdot 10^3$	<10,0
22	$1,00 \cdot 10^4$	<10,0

MLE для логарифмів відношення вміст РВВ / вміст РР після цензурування даних у вигляді < МДА для ^{241}Am на значення його МДА.

Алгоритм D — регресійний аналіз логарифмів вмісту ^{241}Am і ^{137}Cs у відходах для встановлення кореляції між ними і визначення параметрів функціональної залежності: варіант D1 — тільки для значущих результатів вимірювань ^{241}Am ; варіант D2 — для всіх результатів, включно з даними у вигляді < МДА для ^{241}Am після їхнього цензурування на значення його МДА.

Обрання вищезгаданих алгоритмів розрахунку КМ визначалося загальною методологією МАГАТЕ щодо послідовності вибору того чи іншого методу їхнього встановлення. А саме, згідно з наявними рекомендаціями [2–6], спочатку слід скористатися гіпотезою про існування між активністю радіонуклідів у спектрі забруднення відходів простої лінійної залежності. Це відкриває можливість застосовувати середньоарифметичне значення відношення вміст РВВ / вміст РР в якості КМ для паспортизації активності РВВ в упаковках. Якщо рівні активності радіонуклідів у вибірці проб відрізняються за величиною на декілька порядків, для цього випадку найбільше підходить як КМ середньгеометричне значення відношення вміст РВВ/вміст РР, доки дисперсія логарифма цього співвідношення ($D_{2\sigma}$) для двох його стандартних відхилень (σ) не виходить за межі граничного значення, яке зазвичай беруть рівним 10 [3, 4, 6]. Є приклади, коли це обмеження встановлюють більш жорстким на рівні 6 або 8 для $p=0,95$ [6]. Коли дисперсія перевищує 10, слід скористатись результатами кореляційно-регресійного дослідження логарифмів вмісту РВВ і РР. Як наголошується в рекомендаціях МАГАТЕ, статистично значущими можна вважати результати, встановлені за кількістю даних не менше 15, а в ідеалі — від 20 до 40 значень. При цьому, якщо коефіцієнт кореляції (КК) низький (< 0,6), для оцінки активності РВВ у відходах підходить лише середньоарифметичне значення відношення вмісту РВВ і РР [3–5]. МСА, як відомо, дозволяє залучати ND результати після заміни їх на МДА (або інше число, кратне значенню МДА). Як видно з табл. 1–3, кількість значущих результатів для ^{241}Am у вибірках не перевищує 15. Це зумовлює необхідність збільшення їхньої чисельності за рахунок додавання цензурованих результатів.

Послідовність дій щодо визначення КМ за величиною середньоарифметичного або середньгеометричного значення відношення вміст ^{241}Am / вміст ^{137}Cs детально викладено в роботі [8]. Порядок

цензурування ND результатів, пошуку максимальної суми ймовірностей із визначенням КМ та його стандартного відхилення за методом MLE відповідає покроковому порядку дій, викладеному в роботі [14]. Регресійний аналіз логарифмів вмісту ^{241}Am та ^{137}Cs із визначенням КК, його надійності та параметрів функціональної залежності з оцінкою довірчого інтервалу для кожного з них проводили відповідно до [15, 16]. Необхідні розрахунки виконували із застосуванням персонального комп'ютера з ОС Windows 7 і встановленою версією Microsoft Office Excel 2003 SP3 з активованим пакетом прикладних програм «Пошук рішення». Розрахунок КМ за MLE проводили для логарифма ймовірності, як це було рекомендовано в роботі [14] для спрощення пошуку параметрів нового розподілу випадкових даних, які б відповідали максимальному значенню вже не добутку ймовірностей, а сумі логарифмів ймовірностей.

Оцінку прийнятності (надійності) обраних алгоритмів розрахунку КМ для паспортизації активності РВВ у складі упаковок із ТРВ ЧАЕС проводили за кількісною шкалою з використанням поняття рангу. У рамках цієї роботи вважали, що ранг — це кількісний показник ступеня збігання статистичного параметра вибірки даних, відтвореної з використанням КМ, установленого за алгоритмом, до аналогічної характеристики розподілу вмісту ^{241}Am у вихідній вибірці експериментальних результатів (див. табл. 1–3). Для оцінки рангу використовували значення коефіцієнта K_2 , який визначався, як і в роботі [7], величиною відношення статистичного параметра вибірки, розрахованого тим або іншим методом, до відповідного його значення, визначеного за вибіркою експериментальних даних. Але в порівнянні з [7] для комплексної оцінки прийнятності алгоритму для відтворення всього спектра експериментальних результатів K_2 розраховували не тільки для середнього (\bar{A}), але й для мінімального (A_{\min}) та максимального (A_{\max}) вмісту ^{241}Am у відходах. Рангу присвоювали значення $r_i^j = K_2^j$ (де i — номер вибірки від 1 до 3, а j — індекс позначення алгоритму розрахунку від A1 до D2), якщо $K_2^j < 1$, або $r_i^j = |2 - K_2^j|$, для випадку, коли значення $K_2^j > 1$. Порівняння протестованих алгоритмів проводили за величиною його сумарного рангу $r_{\text{sum}}^j(\bar{A})$, $r_{\text{sum}}^j(A_{\min})$ і $r_{\text{sum}}^j(A_{\max})$, який відображав ступінь збігання відповідних статистичних параметрів відтвореної і вихідної вибірок результатів для всіх вибірок одночасно, і значенням його інтегрального рангу, який визначався як сума $R^j = r_{\text{sum}}^j(\bar{A}) + r_{\text{sum}}^j(A_{\min}) + r_{\text{sum}}^j(A_{\max})$.

Результати та обговорення

У табл. 4 для досліджених вибірок даних надано результати встановлення КМ (SF) за алгоритмами розрахунку A1, A2, B і C, оцінки його середньоквадратичного відхилення (σ) та дисперсії ($D_{2\sigma}$) для двох σ . Результати кореляційно-регресійного аналізу даних щодо вмісту ^{241}Am і ^{137}Cs у відходах (алгоритм D) наведено окремо в табл. 5.

Таблиця 4. Установлені коефіцієнти масштабування (SF) та статистичні параметри розподілу його випадкових значень

№ вибірки	Параметр	Алгоритм обробки експериментальних даних			
		A1	A2	B	C
1	\overline{SF}	$1,95 \cdot 10^{-2}$	$1,80 \cdot 10^{-2}$	$1,50 \cdot 10^{-2}$	$1,75 \cdot 10^{-2}$
	σ	$1,41 \cdot 10^{-2}$	$0,90 \cdot 10^{-2}$	$1,65 \cdot 10^{-2}$	$1,54 \cdot 10^{-2}$
	$D_{2\sigma}$	$3,95 \cdot 10^{-4}$	$1,59 \cdot 10^{-4}$	$5,48 \cdot 10^{-4}$ (4,32 < 10)	$4,74 \cdot 10^{-4}$ (4,50 < 10)
2	\overline{SF}	$1,84 \cdot 10^{-2}$	$1,84 \cdot 10^{-2}$	$1,45 \cdot 10^{-2}$	$2,15 \cdot 10^{-2}$
	σ	$1,64 \cdot 10^{-2}$	$1,00 \cdot 10^{-2}$	$1,98 \cdot 10^{-2}$	$8,01 \cdot 10^{-2}$
	$D_{2\sigma}$	$5,40 \cdot 10^{-4}$	$1,96 \cdot 10^{-4}$	$7,87 \cdot 10^{-4}$ (5,16 < 10)	$1,28 \cdot 10^{-2}$ (27 > 10)
3	\overline{SF}	$1,69 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-2}$	$1,75 \cdot 10^{-2}$	$2,24 \cdot 10^{-2}$
	σ	$1,58 \cdot 10^{-2}$	$0,90 \cdot 10^{-2}$	$1,13 \cdot 10^{-2}$	$1,41 \cdot 10^{-1}$
	$D_{2\sigma}$	$5,02 \cdot 10^{-4}$	$1,62 \cdot 10^{-4}$	$2,57 \cdot 10^{-4}$ (2,86 < 10)	$3,96 \cdot 10^{-2}$ (47 > 10)

Примітка. Значення σ для алгоритму B оцінено за методом MLE, для алгоритмів B і C у дужках наведено величину $D_{2\sigma}$ для логарифма відношення (вміст РВВ / вміст РР).

Таблиця 5. Оцінка параметрів лінійної регресійної залежності між логарифмами вмісту ^{241}Am та ^{137}Cs у ТРВ ЧАЕС за вибірками даних, що досліджувались ($p = 0,95$)

Номер вибірки	Кількість даних	Параметр регресії		КК
		Ln(a)	b	
1	14	$-4,42 \pm 2,99$	$1,023 \pm 0,303$	$0,90 \pm 0,03$
	17	$-3,76 \pm 2,05$	$0,954 \pm 0,219$	$0,92 \pm 0,02$
2	11	$-4,73 \pm 3,73$	$1,050 \pm 0,370$	$0,90 \pm 0,04$
	19	$-3,03 \pm 2,76$	$0,831 \pm 0,306$	$0,81 \pm 0,05$
3	10	$-3,51 \pm 2,76$	$0,945 \pm 0,280$	$0,94 \pm 0,02$
	22	$-2,87 \pm 2,65$	$0,794 \pm 0,305$	$0,77 \pm 0,06$

Як видно з табл. 4, застосування різних алгоритмів розрахунку привело до визначення КМ (\overline{SF}), які, по-перше, за значенням відрізняються між собою в межах від 30 до 50 %, і, по-друге, підтверджують відомий факт про те, що величина КМ за середньоарифметичним відношенням вмісту радіонуклідів завжди є більшою за його середньгеометричне значення (для досліджених вибірок даних у 1,1–1,3 раза). У той же час можна відзначити тенденцію до зниження величини КМ, розрахованої за алгоритмом A1 (MCA), у міру збільшення частки цензурованих даних.

Оцінка дисперсії розподілу логарифма відношення вмісту радіонуклідів наведена в табл. 4 у вигляді рівняння з його граничною величиною, що відповідає двом σ . Як можна бачити, тільки для двох значень КМ дисперсія перевищила встановлений критерій. Отже, якщо $D_{2\sigma} < 10$, це дає підстави вважати, що КМ є прийнятним для паспортизації активності РВВ в партії відходів. У випадку, коли $D_{2\sigma} > 10$, розраховане значення КМ не можна вважати достатньо точним і прийнятним для застосування. Таким чином, результати розрахунку за методом MLE (C) для вибірок 2 і 3 (див. табл. 4) не можуть бути використані для оцінки паспортної активності РВВ. Користувачі MLE і раніше зазначали зростання дисперсії після додавання цензурованих даних. Це є недоліком задіяного математичного апарата, який корегує форму розподілу даних з урахуванням результатів, доданих в область найнижчих рівнів. Дані табл. 4 наочно свідчать про те, що чим більша вага доданих до вибірки цензурованих даних, тим більше зростання дисперсії КМ.

Відповідно до методології МАГАТЕ у зазначених вище випадках для оцінки паспортної активності РВВ слід скористатися результатами кореляційно-регресійного дослідження, тобто даними розрахунку за алгоритмом D, відображеними в табл. 5. Як можна бачити, після додавання цензурованих даних у всіх вибірках зберігається достатньо тісний зв'язок ($КК > 0,7$). Кожне значення КК було перевірено на виконання рівняння щодо перевищення його значення 3σ за процедурою, описаною в роботі [16]. Результати перевірки показали, що КК повністю задовольняє цьому критерію, а встановлені функціональні залежності можна залучити до паспортизації активності РВВ.

Слід зазначити, що в роботі [6] був задіяний інший спосіб, за допомогою якого було вирішено проблему з високими значеннями дисперсії середнього геометричного у вибірках експериментальних даних. Це розшарування вибірки за рівнями вмісту РВВ на дві з визначенням КМ для кожної з них. Як показали

Таблиця 6. Результати відтворення статистичних параметрів вибірки експериментальних результатів щодо вмісту ^{241}Am (Бк/кг) у ТРВ ЧАЕС за алгоритмами розрахунку та оцінки параметра K_2 (у дужках)

№ вибірки	Параметр	Результати розрахунку за алгоритмом						Експериментальні дані
		A1	A2	B	C	D1	D2	
1	\bar{A}	681 (0,90)	760 (0,83)	260 (1,0)	303 (1,16)	260 (1,00)	257 (0,99)	753*/912**/260***
	A_{min}	3,1 (0,31)	10,4 (0,65)	8,7 (0,55)	10,2 (0,64)	8,1 (0,50)	10,1 (1,01)	< 10*/16**
	A_{max}	4680 (0,92)	4320 (0,85)	3610 (0,71)	4210 (0,82)	3830 (0,75)	3161 (0,62)	5100
2	\bar{A}	613 (0,95)	911 (0,82)	300 (1,0)	445 (1,49)	298 (1,0)	186 (0,62)	646*/1108**/300***
	A_{min}	2,9 (0,29)	10,5 (1,05)	8,4 (0,52)	12,5 (1,25)	7,0 (0,44)	9,5 (0,95)	< 10*/16**
	A_{max}	4411 (0,86)	4329 (0,85)	3473 (0,68)	5157 (1,01)	3904 (0,77)	1429 (0,28)	5100
3	\bar{A}	323 (0,94)	644 (0,86)	303 (1,0)	387 (1,28)	304 (1,0)	131 (0,43)	344*/745**/303***
	A_{min}	2,7 (0,27)	11,4 (0,71)	10,2 (0,63)	13,0 (0,81)	12,2 (0,76)	8,8 (0,88)	< 10*/16**
	A_{max}	1860 (0,48)	2150 (0,55)	1926 (0,49)	2460 (0,63)	1741 (0,45)	568 (0,15)	3900

* За всіма даними, включаючи дані у вигляді < МДА.

** Тільки за значущими результатами.

*** Середньогометричне за значущими результатами (без додавання цензурованих даних).

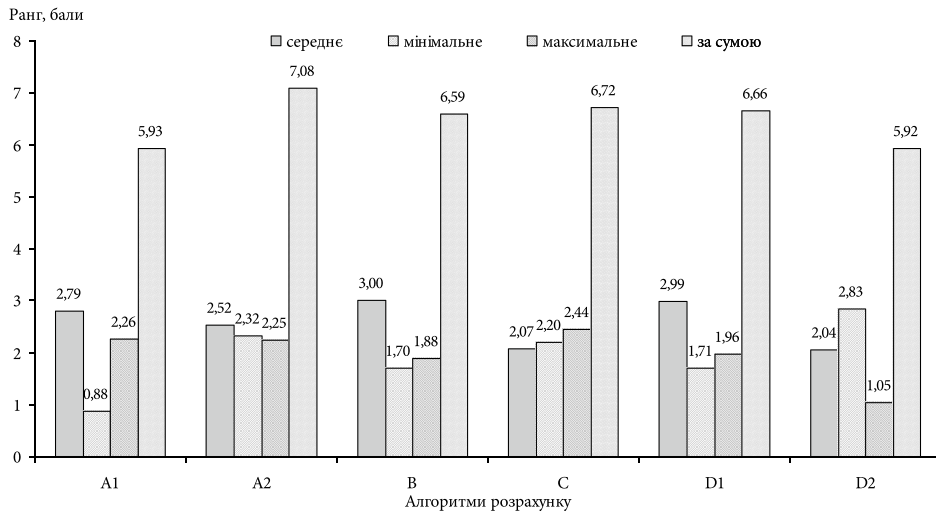
отримані результати, це справді дало змогу визначити прийнятні з точки зору статистичних критеріїв значення K_2 , які можна було використати окремо для кожного шару даних.

Результати відтворення спектра експериментальних даних щодо вмісту ^{241}Am у ТРВ з використанням K_2 , установлених за дослідженими алгоритмами розрахунку, і відповідні значення параметра K_2 наведено в табл. 6. Перша тенденція, на яку слід звернути увагу, — це загалом більш високі значення середнього вмісту ^{241}Am , відновлені з використанням K_2 , визначених без урахування розподілу випадкових даних за нормальним законом. По-друге, додавання значної частки цензурованих даних в область низьких рівнів вмісту нукліда призводить до суттєвого зсуву центру розподілу і його максимуму у відновленому спектрі даних у бік зменшення його значення. По-третє, найбільшою мірою цензурування даних вплинуло на результати використання алгоритму MLE (D2).

Результати визначення сумарного рангу кожного з алгоритмів щодо точності відтворення статистичних характеристик вибірки експериментальних результатів

і його інтегрального рангу за всіма показниками одночасно подано на рисунку. Підсумовуючи результати кількісної оцінки, досліджені алгоритми було ранжовано за ступенем їхньої прийнятності (величини рангу) для паспортизації активності РВВ у відходах з використанням отриманих значень K_2 . Чим більше значення рангу, тим більше підстав вважати його більш прийнятним, і навпаки. У табл. 7 усі алгоритми розташовані від найгіршого до найкращого (зліва направо) за визначеним ступенем прийнятності. Таким чином, з точки зору надійності відтворення середнього (\bar{A}) у вибірці експериментальних даних найкращими є алгоритми B і D1, а найгіршими — алгоритми C і D2.

У цензурованих вибірках найкращий результат для відтворення середнього (\bar{A}) продемонстрував рекомендований МАГАТЕ алгоритм MCA, що підтвердило обґрунтованість його застосування стосовно ТРВ ЧАЕС у випадках, коли в експериментальних результатах у значній кількості присутні дані у вигляді МДА. Якщо свої міркування базувати на значенні інтегрального рангу, то серед інших методів MLE виявився одним з найкращих за ступенем одночасного відтворення всіх



Результати кількісної оцінки алгоритмів розрахунку коефіцієнтів масштабування за сумарним та інтегральним рангами на прикладі вибірки даних щодо вмісту ²⁴¹Am у ТРВ ЧАЕС

характеристик вихідного спектра даних. Однак у цензурованих вибірках за показником точності відтворення середнього вмісту РВВ (A) він був серед найгірших разом з регресійним аналізом логарифмів вмісту (D2).

Таким чином, виходячи з результатів проведеного ранжування, можна зробити такий висновок. Цензурування вибірок даних істотно знижує можливості

алгоритмів, побудованих на відновленні нормального розподілу випадкових результатів, з високою точністю відтворювати статистичні характеристики вихідної вибірки експериментальних даних. Додавання даних в область найнижчих рівнів активності РВВ істотно впливає і на результати регресійного аналізу у вигляді систематичного заниження середніх та мак-

Таблиця 7. Ранжування алгоритмів розрахунку коефіцієнтів масштабування за ступенем прийнятності (надійності) для паспортизації активності РВВ у ТРВ ЧАЕС на прикладі ²⁴¹Am

№ вибірки	Параметр	Ступінь прийнятності алгоритму (зліва направо від найгіршого до найкращого)					
1	\bar{A}	A2 — C		A1	D1 — D2 — B		
	A_{min}	A1	D1	B	C — A2		D2
	A_{max}	D2	B	D1	C	A 2	A 1
2	\bar{A}	C	D2	A2	A 1	D1 — B	
	A_{min}	A1	D1	B	C	D2 — A2	
	A_{max}	D2	B	D1	A1 — A2		C
3	\bar{A}	D2	C	A2	A 1	D1 — B	
	A_{min}	A1	B	A2	D1	C	D2
	A_{max}	D2	D1	A1 — B		A2	C
Bci	\bar{A}	D2 — C		A2	A1	D1 — B	
	A_{min}	A1	B — D1		C	A2	D2
	A_{max}	D2	B	D1	A2 — A1		C
	Bci	D2 — A1		B	D1	C	A2

симальних значень вмісту РВВ у відновленій вибірці порівняно з вихідним спектром даних.

Висновки

На прикладі вмісту ^{241}Am у ТРВ ЧАЕС експлуатаційного походження проведено порівняльне тестування алгоритмів визначення КМ, які використовуються для характеристики РАВ у країнах з розвинутим ядерним паливним циклом. Для визначення ступеня прийнятності того чи іншого алгоритму розрахунку КМ для паспортизації активності РВВ у складі упаковок з ТРВ ЧАЕС, що спрямовуються на захоронення, розроблена кількісна шкала їхньої оцінки.

З точки зору точності відтворення середнього вмісту ^{241}Am у вибірці експериментальних даних найкращим чином проявили себе алгоритми встановлення КМ за результатами оцінки середньгеометричного значення відношення вміст РВВ/вміст РР і регресійного аналізу логарифмів, але тільки для значущих результатів вимірювань.

Для цензурованих вибірок даних найкращий показник точності відтворення середнього вмісту ^{241}Am було отримано з використанням рекомендованого МАГАТЕ алгоритму МСА, що підтвердило обґрунтованість його застосування у випадках, коли в результатах лабораторних вимірювань присутня значна частка даних у вигляді $< \text{МДА}$. За інтегральною оцінкою метод МЛЕ виявився одним з найкращих щодо одночасного відтворення всіх статистичних характеристик вихідного спектра даних, проте для відтворення середнього вмісту РВВ — він серед найгірших.

Додавання до значущих результатів вимірювань цензурованих даних збільшує чисельність вибірки до рекомендованої МАГАТЕ мінімальної кількості даних. Однак унаслідок цього суттєво знижується точність відтворення спектра вихідної вибірки експериментальних даних, особливо для алгоритмів, побудованих на відновленні нормального розподілу випадкових результатів.

Результати проведеного тестування наочно продемонстрували, що для визначення КМ можуть бути обрані різні методи залежно від того, яку проблему потрібно вирішити: недостатня чисельність значущих результатів; відсутність кореляції між даними; значна вага ND результатів ($< \text{МДА}$) тощо. Крім того, неможливість виконання складних розрахунків за методом МЛЕ або неприйнятність КМ за величиною дисперсії середньгеометричного значення логарифма відношення вмісту радіонуклідів можуть скласти

підґрунтя для обрання менш точного алгоритму його визначення. Тому вибір належного методу встановлення КМ за кінцевим користувачем.

Список використаної літератури

1. Критерії приймання радіоактивних відходів на захоронення в спеціально обладнаному приповерхневому сховищі твердих радіоактивних відходів (СОПСТРВ). Перший етап експлуатації СОПСТРВ. Приймання РАВ від ЗППРВ та ЗПТРВ ДСП «ЧАЕС» для захоронення в два симетричних відсіки СОПСТРВ. Редакція 5. Затверджено т. в. о генерального директора Державної корпорації «УкрДО «Радон» — директора ДСП «Техноцентр» А. Д. Новіковим. — Чорнобиль, 2009. — 38 с.
2. ISO 21238:2007. Nuclear energy — Nuclear fuel technology — Scaling factor method to determine the radioactivity of low- and intermediate-level radioactive waste packages generated at nuclear power plants. Geneva: International Organization for Standardization, 2007.
3. Determination and use of scaling factors for waste characterization in NPP. IAEA Nuclear Energy Series NW-T-1.18. — Vienna: IAEA, 2009. — 142 p.
4. Determination of scaling factors to estimate the radionuclide inventory of wastes from the IEA-R1 research reactor / M. H. T. Taddei, J. F. Macacini, R. Vicente [et al.] // J Radioanal. Nucl. Chem. — 2015. — Vol. 303 (3). — P. 2467–2481. doi: 10.1007/s10967-014-3789-3.
5. Statistical sampling applied to the radiological characterization of historical waste / B. Zaffora, M. Magistris, G. Saporta, F. P. La Torre // EPJ Nuclear Sci. Technol. — 2016. — Vol. 2. — P. 34.
6. Control Experiences Regarding Clearable Materials from Nuclear Power Plants and Nuclear Installations: Scaling Factors Determination and Measurements' Acceptance Criteria Definition / L. Albertone, M. Altavilla, M. Marga [et al.] // Environments. — 2019. — Vol. 6 (11). — P. 120. doi:10.3390/environments6110120 (<https://www.mdpi.com/2076-3298/6/11/120>).
7. Mykhailov O. V. New methodological approaches in solving certification problem of historical solid radioactive waste sent for burial from Chernobyl Nuclear Power Plant / O. V. Mykhailov, V. M. Bezmylov // Nuclear Power and the Environment. — 2020. — Vol. 19, no. 4. — С. 39–49.
8. Результаты определения радионуклидного вектора для характеристики твердых радиоактивных отходов ГСП ЧАЭС / А. В. Михайлов, Н. И. Павлюченко, А. В. Мясников, А. К. Терзи // Проблемы Чернобыльской зоны відчуження. — 2019. — Вип. 20. — С. 24–37.

9. Результаты исследований трудноизмеряемых радионуклидов в металле демонтируемого оборудования Чернобыльской АЭС и оценка коэффициентов масштабирования / А. В. Максименко, М. Д. Бондарьков, Б. Я. Осколков [и др.] // Ядерная энергетика та довкілля. — 2019. — № 1 (13). — С. 67–75.
10. Применение методологии радионуклидного вектора для определения активности сложнодетектируемых радионуклидов в потоках РАО / А. П. Варлаков, Я. В. Сергеечева, М. В. Ивлиев [и др.] // Радиоактивные отходы. — 2020. — № 1 (10). — С. 85–91. doi: 10.25283/2587-9707-2020-1-85-91.
11. Data Quality Assessment: Statistical Methods for Practitioners. EPA QA/G-9S. United States Environmental Protection Agency. Office of Environmental Information. — Washington, 2006. — 198 p. — Available at: <https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-08/documents/g9s-final.pdf>.
12. Ogden T. L. Handling results below the level of detection / T. L. Ogden // The Annals of Occupational Hygiene. — 2010. — Vol. 54, no. 3. — P. 255–256. — Available at: <https://doi.org/10.1093/annhyg/mep099>.
13. Croghan C. W. Methods of dealing with values below the limit of detection using SAS / C. W. Croghan, P. P. Egeghy. — Las Vegas: US-EPA, 2003. — 5 p. — Available at: <https://pdfs.semanticscholar.org/98ec/87a1208e06a9f4e08136d245a986c5ff5019.pdf>.
14. Finkelstein M. M. Exposure estimation in the presence of nondetectable values: another look / M. M. Finkelstein, D. K. Verma // AIHA J. — 2001. — Vol. 62. — P. 195–198. — Available at: <https://doi.org/10.1080/15298660108984622>.
15. Ross S. M. Introduction to probability and statistics for engineers and scientists / S. M. Ross. — Third Edition. USA : Elsevier Academic Press, 2004. — 641 p.
16. Mykhailov O. V. Analysis of radionuclide contamination features in solid radwaste of “light” eastern compartment of solid waste repository of Chernobyl NPP / O. V. Mykhailov, V. M. Bezmylov, A. K. Terzi // Nuclear Power and the Environment. — 2020. — Vol. 16, no. 1. — P. 40–48.

O. V. Mykhailov

*Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants,
NAS of Ukraine, 36a, Kirova st., Chernobyl, 07270, Ukraine*

Results of Comparative Evaluation of Algorithms for Calculating Scaling Factors of Difficult-To-Measure Nuclides in CHNPP Wastes at ²⁴¹Am Example

The criteria for radwaste acceptance valid in the Exclusion Zone of SSE “Chernobyl NPP” require that each batch (package) of solid radioactive waste (SRW) sent for burial be certified. For the radionuclides that are difficult to measure (DTM) with using standard control systems directly in a package, the IAEA recommends using the Scaling Factors (SF). In the course of special studies to determine their quantitative values, some difficulties were encountered when analyzing laboratory data on the DTM nuclide in SRW, which largely consisted of so-called non-detectable (ND) results declared in the reports as <MDA (less than the minimum detectable activity).

The work was aimed to evaluate the known algorithms for SF determination used in the world practice of radwaste management, in terms of acceptability of their application to laboratory data sampling with different proportions of ND results (<MDA) on the example of ²⁴¹Am content in ChNPP historical waste. Three data sampling were formed with the share of ND results equaling to 18, 42 and 55 percent.

This work addresses several methods for SF calculation, which are used in radwaste management systems of the countries with developed nuclear fuel cycle. Among the selected algorithms for data process testing, the most powerful one of methods for ND results censoring is included — the method of maximum likelihood estimation (MLE), which allows by restoring the normal law of distribution of random data to most accurately adjust the value of mean contaminant content according to the probability of appearance of each of measurement results, with taking into account the added ND results after their censoring by a numerical value multiple of MDA. The possibilities of selected algorithms, from the viewpoint of accuracy of statistical indicators’ reproduction in the initial arrays of experimental data sampling with SF application, were investigated on “problematic” data sampling related to ²⁴¹Am content in ChNPP historical waste. The studied algorithms are ranked according to the quantitative scale of acceptability (reliability) assessment for each of them for the use in radwaste management system of ChNPP for certification of DTM activity contained in the SRW packages. The data obtained allowed drawing conclusions on the most acceptable algorithms that can be recommended for SF calculation, depending on the content of experimental data collected after laboratory control. The influence of data censoring on the accuracy of reproduction of the original spectrum of experimental data for different algorithms is estimated. The validity of use of Mean Activity Method recommended by the IAEA for data sampling, which contains a significant proportion of ND results, was confirmed.

Keywords: radioactive waste, Chornobyl NPP, specific activity, minimum detectable activity, difficult-to-measure nuclides, key nuclides, scaling factor.

References

1. *Criteria for acceptance of waste for burial in specially equipped near-surface repository for solid radwaste (SESRSRW). First stage of SESRSRW operation. Acceptance of RAW from SSE "ChNPP" PTLRW and PTRSW for burial in two symmetrical compartments of SESRSRW.* Revision 5. Endorsed by acting Director General of State Corporation "UkrSE 'Radon'". Chornobyl, 2009. 38 p. (in Ukr.)
2. ISO 21238:2007. *Nuclear energy — Nuclear fuel technology — Scaling factor method to determine the radioactivity of low- and intermediate-level radioactive waste packages generated at nuclear power plants.* Geneva: International Organization for Standardization, 2007.
3. IAEA (2009). *Determination and use of scaling factors for waste characterization in NPP.* IAEA Nuclear Energy Series NW-T-1.18. Vienna: IAEA, 142 p.
4. Taddei M. H. T., Macacini J. F., Vicente R., Marumo J. T., Terremoto L. A. A. (2015). Determination of scaling factors to estimate the radionuclide inventory of wastes from the IEA-R1 research reactor. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 303, no. 3, pp. 2467–2481. doi: 10.1007/s10967-014-3789-3.
5. Zaffora B., Magistris M., Saporta G., La Torre F. P. (2016). Statistical sampling applied to the radiological characterization of historical waste. *EPJ Nuclear Sci. Technol.*, vol. 2, art. 34. doi: 10.1051/epjn/2016031.
6. Albertone L., Altavilla M., Marga M., Porzio L., Tozzi G., Tura P. (2019). Control experiences regarding clearable materials from nuclear power plants and nuclear installations: Scaling factors determination and measurements' acceptance criteria definition. *Environments*, vol. 11, no. 6, p. 120. doi:10.3390/environments6110120.
7. Mykhailov O. V., Bezmylov V. M. (2020). New methodological approaches in solving certification problem of historical solid radioactive waste sent for burial from Chornobyl Nuclear Power Plant. *Nuclear Power and the Environment*, vol. 19, no. 4, pp. 39–49.
8. Mikhailov A. V., Pavliuchenko N. I., Miasnikov A. V., Terzi A. K. (2019). [Results of radionuclide vectors determination to be used in characterization of SSE NPP's solid radwaste]. *Problemy Chornobyl'skoi zony vidchuzhennia [Problems of Chornobyl exclusion zone]*, vol. 20, pp. 13–26. (in Russ.)
9. Maksymenko A. M., Bondarkov M. D., Oskolkov B. Ya., Seida V. A., Dubas V. N. (2019). [Results for Studies of Hard-to-Measure Radionuclides in the Metal of Chornobyl Nuclear Power Plant Equipment being Dismantled, and Estimation of Scaling Factor]. *Yaderna Energetyka ta Dovkillia [Nuclear Power and the Environment]*, vol. 13, no. 1, pp. 67–75. (in Russ.)
10. Varlakov A. P., Sergeicheva Y. V., Ivliev M. V., Varlakova G. A., Gorbunov V. A., Karlin S. V. (2020). Application of the nuclide-vector methodology to determine the activity of difficult-to-measure radionuclides in radioactive waste streams. *Radioactive Waste*, vol. 10, no. 1, pp. 85–91. doi: 10.25283/2587-9707-2020-1-85-91. (in Russ.)
11. US EPA (2006). *Data Quality Assessment: Statistical Methods for Practitioners.* EPA QA/G-9S. Washington: United States Environmental Protection Agency. Office of Environmental Information, 198 p. Available at: <https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-08/documents/g9s-final.pdf>.
12. Ogden T. L. (2010). Handling results below the level of detection. *The Annals of Occupational Hygiene*, vol. 54, no. 3, pp. 255–256. Available at: <https://doi.org/10.1093/annhyg/mep099>.
13. Croghan C. W., Egeghy P. P. (2003). *Methods of dealing with values below the limit of detection using SAS.* Las Vegas: United States Environmental Protection Agency, 5 p. Available at: <https://pdfs.semanticscholar.org/98ec/87a1208e06a9f4e08136d245a986c5ff5019.pdf>.
14. Finkelstein M. M., Verma D. K. (2001). Exposure estimation in the presence of nondetectable values: another look. *AIHA J.*, vol. 62, pp. 195–198. Available at: <https://doi.org/10.1080/15298660108984622>.
15. Ross S. M. (2004). *Introduction to probability and statistics for engineers and scientists.* Third Edition. USA: Elsevier Academic Press, 641 p.
16. Mykhailov O. V., Bezmylov V. M., Terzi A. K. (2020). Analysis of radionuclide contamination features in solid radwaste of "light" eastern compartment of solid waste repository of Chornobyl NPP. *Nuclear Power and the Environment*, vol. 16, no. 1, pp. 40–48.

Надійшла 24.05.2021

Received 24.05.2021