

О. В. Михайлов, В. М. Безмилов

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

Верифікація коефіцієнтів масштабування, призначених для радіологічної характеристики твердих радіоактивних відходів АЕС за методологією МАГАТЕ. Огляд сучасних підходів

Ключові слова:

тверді радіоактивні відходи, радіонукліди, що важко вимірюються, питома активність, мінімально детектована активність, коефіцієнт масштабування, верифікація

Наведено огляд світового досвіду застосування процедури верифікації в системі характеристики твердих радіоактивних відходів (ТРВ) АЕС та інших ядерних установок. Виконано оцінку сучасного стану застосування методології коефіцієнтів масштабування (КМ) для радіологічної характеристики ТРВ, що спрямовуються на захоронення. Визначено необхідність застосування обов'язкової епізодичної або систематичної перевірки (верифікації) установлених раніше (діючих) КМ для забезпечення надійності визначення паспортної активності радіонуклідів, що важко вимірюються, у складі ТРВ. Узагальнено досвід проведення верифікації шляхом валідації КМ із застосуванням кількісних критеріїв, за результатами порівняння з якими приймається рішення стосовно подальшого застосування діючих КМ до інших партій відходів або визнання необхідності їхнього оновлення. Зроблено висновок про те, що верифікація є необхідним елементом забезпечення надійності застосування методології КМ для радіологічної характеристики ТРВ, що спрямовуються на захоронення.

Вступ

Для забезпечення безпеки сховищ, що використовуються для остаточного захоронення твердих радіоактивних відходів (ТРВ), які утворюються в процесі експлуатації АЕС та інших ядерних установок або після зняття їх з експлуатації, проводиться контроль відповідності рівнів їхнього радіонуклідного забруднення діючим критеріям приймання [1, 2]. Кожен клас ТРВ має свою максимально допустиму активність, розраховану шляхом оцінки безпеки сховища на період експлуатації, для окремих радіонуклідів у кожному класі відходів застосовуються максимально допустимі активності [3–6]. Кількість радіонуклідів, що становлять інтерес, а також класифікація відходів варіюються від країни до країни. Більшість радіонуклідів, питома та сумарна актив-

ність яких має бути визначена та вказана в паспорті на упаковку, належать до так званих радіонуклідів, що важко вимірюються (РВВ). В англійській літературі аналог скороченої назви РВВ зустрічається в редакціях DTM (від difficult-to-measure) або НТМ (від hard-to-measure) nuclide [1, 2, 6–14]. Питому активність (вміст) таких радіонуклідів у ТРВ можна визначити тільки в лабораторних умовах із застосуванням повного циклу аналізу зразків, відібраних від матеріалів, що віднесені до відходів. Це займає багато часу й вимагає чимало матеріальних витрат для проведення підготовчих операцій і вимірювань. Для оперативного вирішення проблем із радіологічною характеристикою ТРВ, що надходять на захоронення, у багатьох країнах світу для визначення активності РВВ застосовують scaling factors (SF) — коефіцієнти масштабування (КМ), набори яких за переліком

© О. В. Михайлов, В. М. Безмилов, 2023

радіонуклідів, що належать до паспортизації, мають назву «радіонуклідні вектори» (РВ) [13–16].

Незважаючи на свою тривалу історію, загальна методологія застосування КМ [10] залишається майже незмінною, однак певні проблеми із забезпеченням надійності визначення питомої та сумарної активності РВВ в упаковках з ТРВ періодично виникали в різних країнах світу. В основному це пов'язано з тим, що, по-перше, радіологічні характеристики раніше досліджених потоків відходів змінюються з часом унаслідок радіоактивного розпаду. По-друге, відношення активності між радіонуклідами в новій партії ТРВ, наприклад зі складу нового шару складованих відходів чи з іншої секції сховища, можуть суттєво відрізнитися від попередньо встановлених значень [6–9, 11–15]. Для забезпечення надійності застосування методології МАГАТЕ в різних країнах світу один раз на 1–5 років проводилась епізодична або періодична перевірка та оновлення (update) значень КМ. У літературі [1, 8, 13–15] така процедура зустрічається під назвою «верифікація».

Метою роботи є узагальнення світового досвіду верифікації КМ, які за методологією МАГАТЕ використовуються для визначення паспортної активності РВВ у партіях ТРВ, що спрямовуються на захоронення.

Поточний стан застосування методології коефіцієнтів масштабування в різних країнах

Найголовнішим базовим принципом застосування методології КМ у системі радіологічної характеристики ТРВ є існування кореляції між питомою активністю (вмістом) радіонуклідів в їхньому складі [1, 2, 8, 10]. Кореляція має бути між альфа-і бета-випромінювачами із числа РВВ, що підлягають паспортизації, та радіонуклідами з числа реперних (ключових від *key nuclides* в англомовній літературі) радіонуклідів (РР), вміст яких можна легко визначити за результатами неруйнівних методів аналізу (наприклад, гамма-спектрометрії) з можливістю їхнього застосування безпосередньо в технологічному ланцюгу з радіологічної характеристики упаковок із ТРВ. За визначенням, КМ є безрозмірною величиною (dimensionless factor), просто множником, або функцією (скорочено CF — від англійської назви *correlation function*), встановленою за результатами визначення математичного взаємозв'язку між вмістом РВВ і РР [1, 8]. Якщо КМ є простим множником, вміст РВВ можна легко визначити — помножити значення КМ на вимірюваний вміст РР у ТРВ.

У цьому випадку як КМ використовують середнє відношення «вміст РВВ / вміст РР» у представницьких зразках ТРВ [1, 7–12] або значення відносного внеску (relative proportions) активності РВВ у сумарну активність зразка [6, 13]. В іншому випадку замість числових значень КМ використовують функціональні залежності (CF) між вмістом (або логарифмами вмісту) РВВ і РР від найпростіших лінійних рівнянь до складних регресійних моделей [1, 2, 8]. Для кожного потоку (партії) відходів (матеріалів, що можуть бути об'єднані в одну групу за ознакою однорідності) КМ, що відповідають окремим РВВ, питома та сумарна активність яких належить паспортизації, об'єднують у РВ.

Для отримання перерахованих вище даних і розрахунку КМ МАГАТЕ рекомендує провести спеціальне дослідження (рис. 1), яке має передбачати наступні кроки.

Крок 1. Планування експерименту, тобто вивчення можливих механізмів забруднення різних матеріалів, які після завершення циклу їхнього використання впродовж кампанії роботи реакторної установки чи іншого обладнання, у складі якого є джерело іонізуючого випромінювання, належать до радіоактивних відходів. Кореляція між вмістом РВВ та РР (звичайно з числа таких, як ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{241}Am) залежить від різних факторів, таких як тип реактора, матеріали компонентів реактора, історія палива і механізм утворення радіоактивних ізотопів, зміни хімічного складу теплоносія реактора, поведінка з відходами тощо [1, 2]. Це важливо для складання програми пробовідбору, визначення необхідної кількості зразків та їхнього мінімального розміру для виконання лабораторного аналізу. Для встановлення оптимальної чисельності вибірки експериментальних даних звичайно застосовують статистичні методи розрахунку з метою мінімізації похибки оцінки середнього значення, як у роботі [17], або за процедурою, де прийняття рішення ґрунтується на забезпеченні нижньої межі довірчого інтервалу для коефіцієнта кореляції [8].

Крок 2. Відбір представницьких проб відходів, які спрямовуються на захоронення, і лабораторне визначення в зразках вмісту радіонуклідів, що належать до паспортизації у ТРВ. Виконання цього етапу дослідження має забезпечити отримання необхідного об'єму експериментальних даних для визначення CF та статистично достовірних середніх показників відношення «вміст РВВ / вміст РР» у партії ТРВ, що використовуються потім для оцінки КМ і встановлення РВ.

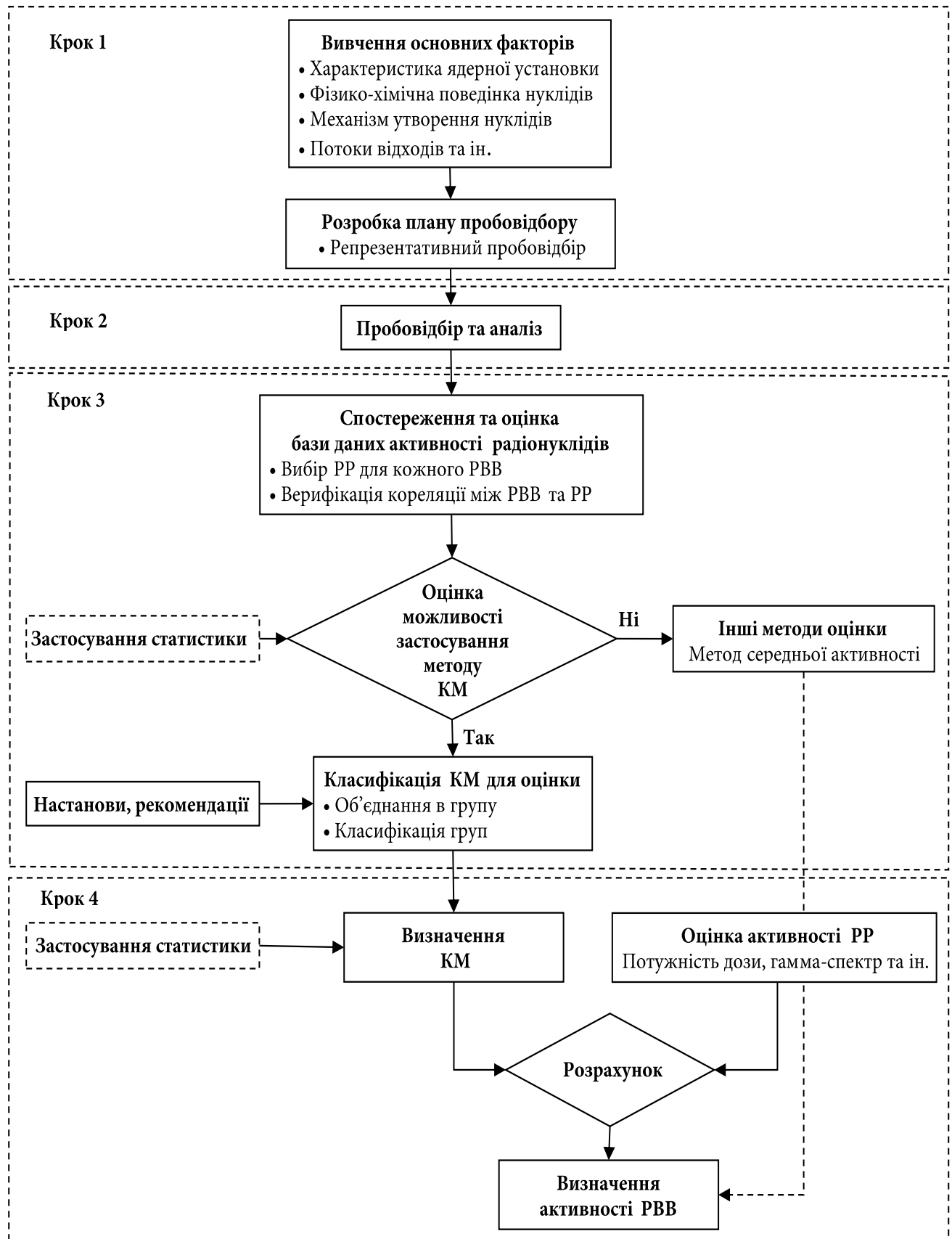


Рис. 1. Блок-схема реалізації методології КМ, рекомендованої МАГАТЕ [8, 10]

Крок 3. Статистична обробка отриманих результатів лабораторних вимірювань. Цей етап включає і застосування різних тестів (наприклад, Граббса) для виключення аномальних результатів, і формування вибірки даних для проведення наступних розрахункових операцій, установлення кореляцій між вмістом РВВ і РР та оцінки значимості коефіцієнта кореляції. Це важливо для розуміння того, наскільки надійно визначені СФ можна застосовувати для прогнозування вмісту певного РВВ у складі відходів. Зазвичай для цього використовують тестову статистику Стюдента і розраховують значення коефіцієнта детермінації, який показує ступінь відповідності встановленої СФ реальному спектру розсіяння експериментальних даних.

Якщо кореляції між вмістом (або логарифмами вмісту) РВВ і РР немає, на цьому етапі дослідження має бути прийняте рішення про застосування іншого методу розрахунку КМ з огляду на те, який був отриманий масив експериментальних даних (усі результати значущі або є результати вимірювань у вигляді «< МДА» — менше значення мінімально детектованої активності), яка їхня загальна чисельність і внесок у загальну кількість даних. Залежно від результату оцінки складу наявних експериментальних даних може бути прийнято рішення стосовно проведення додаткового пробовідбору, формування іншої вибірки даних з урахуванням доданих результатів і повторний їхній аналіз або ж застосований так званий метод середньої активності, який рекомендують для консервативної оцінки КМ для випадку, коли рівні вмісту РВВ для більшості результатів не виходять за межі МДА [1, 12]. Як показала практика, значний внесок у загальну кількість результатів вимірювань у вигляді «< МДА» привносить суттєві складнощі в процес їхньої статистичної обробки й оцінки середніх відношень вмісту РВВ і РР за їхньою можливою формою розподілу та зменшує надійність прогнозу рівнів вмісту РВВ у відходах із використанням КМ [9, 12, 18].

Крок 4. Визначення КМ і побудова (встановлення) РВ для кожного окремого потоку ТРВ. Слід зазначити, що на цьому етапі дослідження за допомогою того чи іншого методу для кожної пари РВВ — РР розраховують числові значення КМ і будують РВ, який призначається для паспортизації активності (питомої та сумарної) РВВ у складі ТРВ. У більшості країн із розвинутим ядерним паливним циклом для цього використовують середньоарифметичне значення відношення «вміст РВВ / вміст РР» (наприклад, Японія,

Словенія та Великобританія) або середньгеометричне (логарифмічне) значення цього відношення (наприклад, Бразилія, Канада, Франція, Республіка Корея, Італія, Іспанія, Швеція та США). У таких країнах, як Німеччина, Угорщина, Литва, Мексика та Словаччина, для паспортизації активності РВВ у ТРВ використовують СФ, тобто результати регресійного аналізу логарифмів вмісту РВВ і РР [1].

Якщо вимірювання вмісту окремих РВВ зумовлює складнощі, для їхньої оцінки рекомендують скористатися теоретично можливими відношеннями між вмістом РВВ і РР [1, 2, 16]. Однак практика показала, що для так званих історичних відходів, що накопичувалися протягом тривалого часу на АЕС і без сортування відправлялися на тимчасове зберігання у сховище, практично неможливо врахувати в моделі розрахунку всі особливості формування спектра радіонуклідного забруднення матеріалів [1, 2, 6, 15].

За визначенням, РВ призначений для застосування лише в межах одного потоку ТРВ, який складається з матеріалів, віднесених до однієї групи за діючими критеріями сортування (наприклад, [16]). На практиці різні потоки ТРВ об'єднують і для їхньої характеристики застосовують один РВ. На початкових етапах впровадження методології МАГАТЕ такий підхід використовували для отримання більш статистично значимих середніх показників розподілу вмісту радіонуклідів у різних типах відходів, схожих за фізичними характеристиками, але забруднених в умовах експлуатації інших АЕС [2]. На сьогодні метою таких дій є прагнення скоротити час роботи на виконання операцій із сортування відходів, зменшити дози опромінення задіяного персоналу та загальні економічні витрати на переробку і захоронення окремих видів ТРВ. Однак таке рішення має бути обґрунтованим за статистичними критеріями, як це продемонстровано в роботах [11, 13–15].

Як видно з рис. 1, у представленому вище загальному порядку реалізації методології МАГАТЕ не передбачена процедура, яка має відповідати за перевірку та оновлення встановлених раніше КМ і РВ. Однак за даними [1, 8, 13–15] така процедура існує і застосовується на практиці під назвою «верифікація».

Якщо звернутися до останніх аналітичних матеріалів, присвячених узагальненню питань практики характеристики різних видів радіоактивних відходів і матеріалів, наприклад [19], можна дійти висновку, що верифікація (перевірка) та валідація (підтвердження) є обов'язковими етапами на шляху забезпечення гарантій якості отримання інформації

щодо їхніх радіаційних та інших характеристик. Це стосується як первинної інформації, тобто результатів лабораторних вимірювань вмісту радіонуклідів у складі представницьких зразків, так і наступних даних, отриманих у ході застосування різноманітних тестів і методів їхньої статистичної оцінки. За визначенням [19], валідація — це процедура, за результатами якої можна з високим ступенем впевненості стверджувати, що конкретний процес, метод або система буде послідовно приводити до результатів, які відповідають заздалегідь установленим критеріям прийнятності. У той же час верифікація має надати докази того, що ймовірний факт або твердження є істинним. Блок-схема, подана на рис. 2, дає можливість скласти уявлення про те, в яких ланцюгах складного процесу отримання даних щодо об'єкта характеристики має застосовуватися верифікація та які функції покладені на цю процедуру.

Приклад, поданий на рис. 2, наочно демонструє, що процес систематичної оцінки отриманих даних має розпочинатися лише після їхньої верифікації та валідації експертами та/або досвідченими співробітниками. На цьому етапі мають бути виявлені недоліки як застосованих методів, так і помилки в результатах вимірювань. Наукова та статистична оцінка даних має за мету визначити, чи є вони належного типу, якості та кількості для досягнення цілей характеристики та підтримки прийняття відповідних рішень. Детально вимоги та зміст кожного етапу застосування верифікації та валідації (див. рис. 2) викладені в [19] або інших аналогічних настановах та звітах.

Якщо повернутися до результатів аналізу поточного стану та досвіду застосування методології КМ, дані, наведені в роботах [1, 2, 6–9, 11–15, 18], дозволяють стверджувати таке:

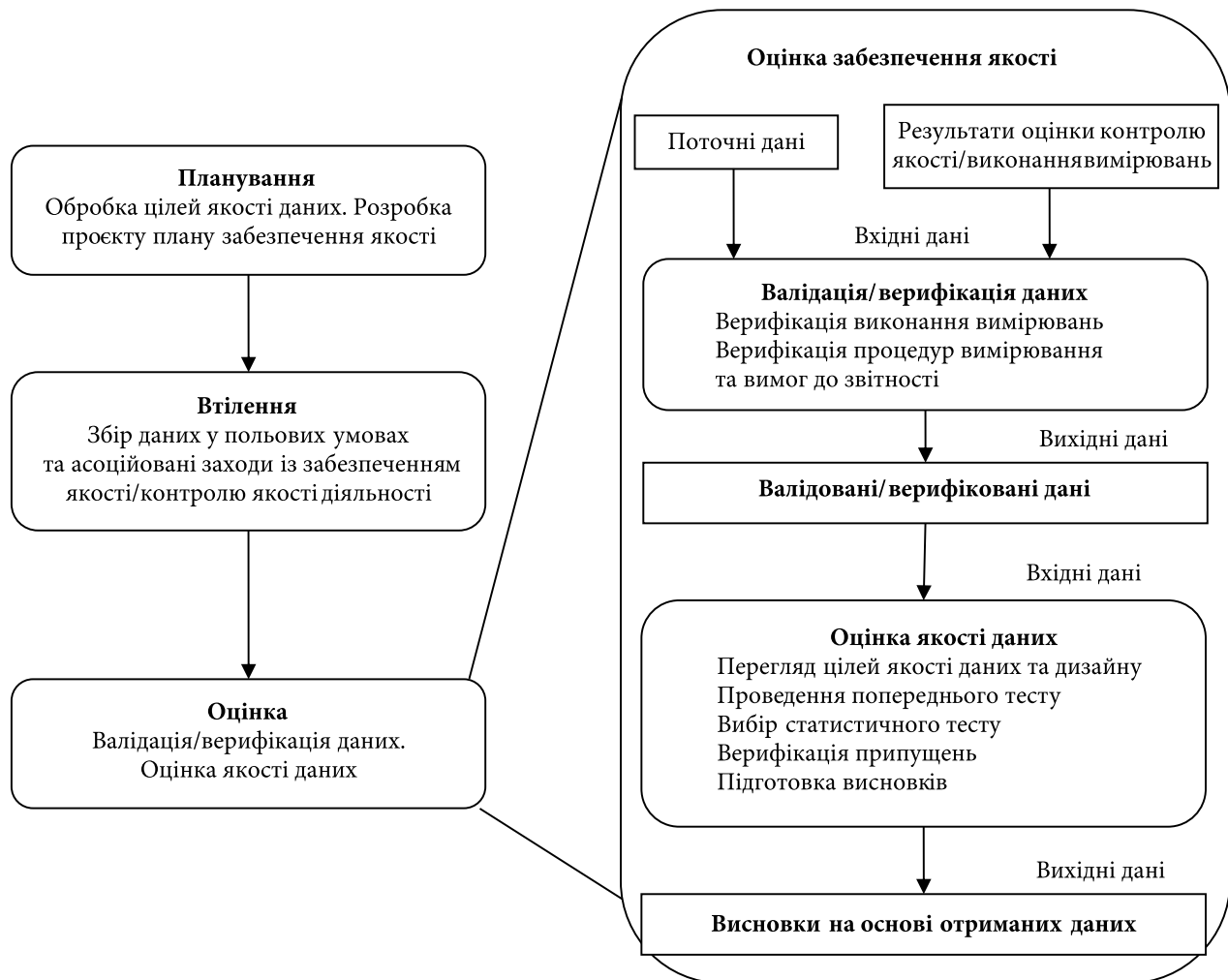


Рис. 2. Приклад застосування верифікації і валідації на етапах отримання даних стосовно властивостей об'єкта характеристики [19]

діапазон вмісту РВВ, прогнозований з використанням середньоарифметичного значення його відношення до вмісту РР, завжди зміщується в бік більших значень, на відміну від використання його середньогометричного параметра, коли він залишається практично незмінним;

вміст РВВ, оцінений за середньогометричним значенням його відношення до вмісту РР, зазвичай призводить до заниження в діапазоні низьких значень, тоді як за середньоарифметичним параметром — до завищення в діапазоні високих значень;

недооцінка в діапазоні низьких значень вмісту РВВ мало впливає на оцінку остаточного запасу сховища для захоронення ТРВ, тоді як його завищення в діапазоні високих значень вмісту РВВ призводить до значно більшого впливу на цей показник;

найбільш точний прогноз щодо вмісту РВВ у ТРВ забезпечує використання СР, установлених за результатами регресійного аналізу експериментальних даних;

наявність значної частки результатів вимірювань у вигляді «МДА» для деяких РВВ, що є характерною рисою історичних відходів, суттєво впливає на точність оцінки середніх показників щодо відношення вмісту РВВ і РР. Застосування методу середньої активності дає значення КМ, які призводять до систематичного завищення паспортної активності РВВ у ТРВ, особливо у випадку, коли всі дані вимірювань у вигляді «МДА».

Методичні підходи щодо верифікації коефіцієнтів радіонуклідних векторів

Як було зазначено вище, для забезпечення надійності визначення паспортної активності РВВ у ТРВ за методологією МАГАТЕ в різних країнах світу була застосована процедура перевірки (верифікація) з метою визначення прийнятності застосування раніше визначених КМ для характеристики нових партій ТРВ [1, 8, 11, 13–15]. Необхідний масив експериментальних даних був сформований після додаткового пробовідбору у сховищах відходів і проведення відповідного об'єму лабораторних досліджень з метою визначення вмісту радіонуклідів у репрезентативних зразках ТРВ. Узагальнення опублікованих даних дозволяє виділити базовий підхід, який застосовувався для верифікації КМ. По-перше, це проведення спеціального статистичного дослідження (тесту) з порівнянням параметрів розподілу відношення «вміст РВВ / вміст РР» у ТРВ у попередніх і нових вибірках експериментальних даних. По-друге, результат застосування тесту має дати відповідь на два основних запитання — сто-

совно можливості застосування діючих КМ до нової партії відходів та застосування одного РВ для різних потоків (партій), визначеного за сумою даних.

Алгоритм тесту такий. У вибірці експериментальних даних, сформованій із результатів повторного пробовідбору або з результатів, отриманих для нової партії ТРВ, для всіх РВВ визначають КМ як середньогометричне значення відношення «вміст РВВ / вміст РР» (SF) та його середньогометричне відхилення (S). Після цього за t -статистикою Стьюдента (two-sample t -test) оцінюють значущість різниці між двома значеннями SF , визначеними за попередніми (SF_1) і новими (SF_2) результатами вимірювань у межах допустимого рівня відмінності (D) [1, 8]:

$$t = \frac{|\overline{SF_1} - \overline{SF_2}| - \log D}{S \sqrt{\frac{1}{n_1} + \frac{1}{n_2}}} \approx t_{(n_1+n_2-2)}, \quad (1)$$

де $\overline{SF_1}$ і n_1 — середньогометричне значення SF і кількість даних у вибірці 1; $\overline{SF_2}$ і n_2 — середньогометричне значення SF і кількість даних у вибірці 2; D — допустимий рівень відмінності; S — корінь квадратний з об'єднаної дисперсії (pooled variance), яка розраховується як

$$S^2 = \frac{(n_1 - 1) \cdot S_1^2 + (n_2 - 1) \cdot S_2^2}{n_1 + n_2 - 2}, \quad (2)$$

де S_1^2 і S_2^2 — дисперсії $\overline{SF_1}$ і $\overline{SF_2}$ у вибірках 1 і 2 відповідно.

Як можна бачити, наведений вище алгоритм перевірки статистичної гіпотези про те, що між SF_1 і SF_2 немає істотної різниці, можна застосовувати як до двох різних SF , що належать як до одного потоку (одне — за попередніми, а інше — за новими результатами вимірювань), так і до різних потоків ТРВ. Визначене у формулі (1) значення D може бути прийнято рівним 1, як, наприклад, у роботі [15], якщо перевіряється гіпотеза, в якій базовим припущенням є збіг розподілу випадкових даних у двох вибірках за нормальним законом (SF_1 має збігатися з SF_2).

Величина t , розрахована за формулою (1), порівнюється з її критичним табличним значенням [20] відповідно до обраного рівня значущості (наприклад, для $\alpha = 0,05$) і числа ступенів свободи n ($n = n_1 + n_2 - 2$). Якщо за результатами тесту встановлено, що умови нерівності $t < t_{\alpha, n}$ виконані, це дає підставу стверджувати про відсутність істотної різниці між SF_1 і SF_2 . Отже, у цьому випадку до нової партії ТРВ можна застосовувати діюче (попереднє) значення SF , оновлювати SF_1 на SF_2

немає сенсу, оскільки немає підстав стверджувати, що значення SF_1 змінилося. При застосуванні тесту для порівняння SF_1 і SF_2 , що відповідали різним потокам ТРВ, наведений вище результат порівняння дозволяє зробити висновок: для характеристики досліджених потоків відходів можна застосовувати один SF , розрахований за сумою даних. Для цього слід додати, що визначення нового значення SF за сумою даних має сенс лише тоді, коли це призводить до звуження його дисперсії в межах допустимих значень.

У протилежному випадку, якщо за результатами тесту встановлено, що умови нерівності не виконані, тобто $t > t_{\alpha, n}$, це дає підставу вважати, що SF_1 і SF_2 не випадково відрізняються один від одного й розбіжність між ними достовірно значима або виходить за межі встановленого значення D . У цьому випадку слід зробити інший висновок: для визначення паспортної активності РВВ в ТРВ, що належать до різних потоків, слід застосовувати окремі значення SF_1 і SF_2 .

Таким чином, наведена вище процедура верифікації дозволяє прийняти статистично обґрунтоване рішення щодо подальшого застосування діючих КМ або визнання необхідності їхнього оновлення.

Ще один підхід щодо порядку верифікації КМ наведено в роботі [8]. Для його здійснення належить застосувати статистичний тест і перевірити гіпотезу про відсутність ненульового нахилу в лінійному тренді нового КМ (SF) порівняно з його попереднім значенням. Якщо нульова гіпотеза ($H_0: \beta_1 = 0$, де β_1 — нахил SF з часом) правильна, немає необхідності оновлювати КМ, оскільки не можна стверджувати, що середнє відношення «вміст РВВ/вміст РР» змінилося із часом. Однак проте, які кількісні критерії слід застосовувати до оцінки величини нахилу нового КМ, у роботі [8] не наводяться.

У роботі [13] верифікація РВ (тобто набору КМ, що відповідають окремим РВВ) була здійснена шляхом валідації відповідності нових КМ (для кожного РВВ) параметрам розподілу їхніх попередніх значень за нормальним законом. Основним критерієм валідності було попадання нового значення КМ у межі 95 %-го довірчого діапазону розподілу випадкових даних за логнормальним законом відносно попередньо встановленого його середньгеометричного значення SF :

$$\frac{\overline{SF}}{D_{2\sigma}} \leq (SF)_i \leq \overline{SF} \cdot D_{2\sigma}, \quad (3)$$

де $D_{2\sigma}$ — дисперсія \overline{SF} , максимальне значення якої не повинно перевищувати $D_{2\sigma} \leq 10$ [1, 11].

У випадку, коли умови нерівності (3) не виконувалися, у роботі [13] проводилася додаткова перевірка з використанням іншого критерію валідності — неперевикнення граничного значення параметра $E_n < 1$, розрахованого як

$$E_n = \frac{|x - X|}{\sqrt{(u_p^2 + u_f^2)}}, \quad (4)$$

де x і X значення SF , розраховані за новими і попередніми даними відповідно; u_p і u_f — стандартне відхилення нового та попереднього значень SF відповідно.

За результатами проведеної перевірки критерію валідності були задовільними для всіх РВВ, що дало підставу зробити в роботі [13] важливий висновок: незалежно від того, в якому році впродовж періоду 1988–2008 рр. були вироблені ТРВ, для їхньої характеристики може бути застосований один РВ.

Методологія МАГАТЕ була успішно застосована для оцінки вмісту 15 РВВ у складі таких ТРВ, як відпрацьовані іонообмінні смоли та відпрацьоване активоване вугілля [11]. Значення КМ у вигляді SF або CF , що пов'язують вміст РВВ і двох гамма-випромінюючих РР (^{60}Co , ^{137}Cs), були отримані окремо для двох партій відходів, вироблених у 1993 і 2003 рр. під час проведення регламентних робіт для перезапуску дослідницького реактора, а також для об'єднаної вибірки експериментальних даних. Наведені в роботі [11] дані наочно підтвердили важливість застосування критерію валідності (3), особливо коли вирішується питання щодо об'єднання попередніх і нових даних з метою визначення більш статистично значимої величини КМ. На рис. 3 наведено ілюстрацію з роботи [11] для даних, що відповідають двом партіям іонообмінних смол, утилізованих у різні роки, яка дає можливість наочно оцінити неможливість їхнього об'єднання для визначення єдиного КМ, хоча з точки зору параметрів наведеного рівняння регресії (CF) кореляція між логарифмами вмісту РВВ і РР є задовільною для всіх даних.

За результатами проведеного дослідження і перевірки валідності нових КМ у роботі [11] було встановлено:

для одних типів ТРВ, на прикладі відпрацьованого активованого вугілля, для переважної більшості РВВ можна об'єднати попередні й нові дані та застосовувати до них єдиний КМ (SF), який задовольняє умовам нерівності (3);

для інших ТРВ, на прикладі відпрацьованих іонообмінних смол, навпаки, об'єднання є неприпустимим для РВВ лише в окремих випадках.

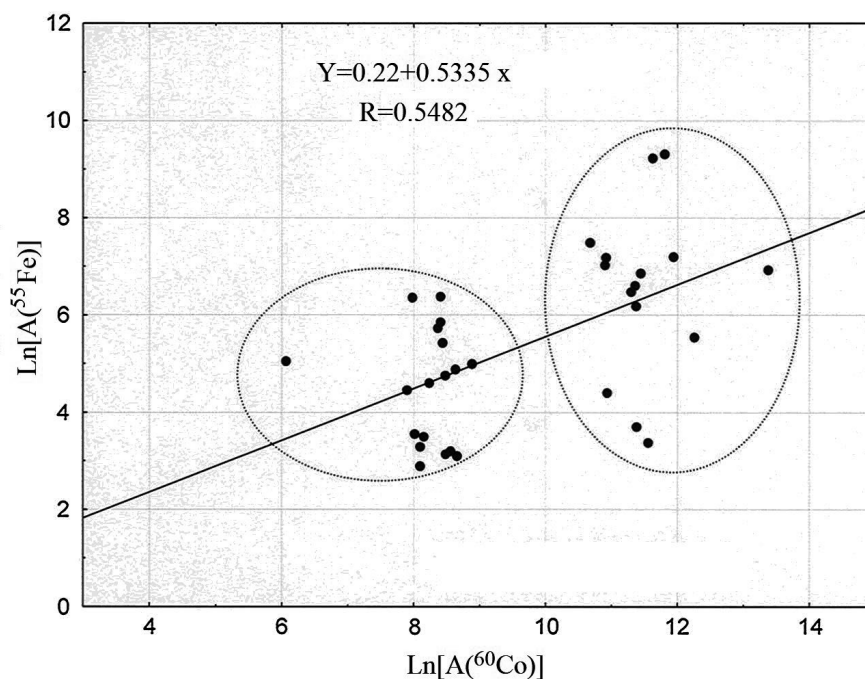


Рис. 3. Приклад розшарування даних результатів вимірювання вмісту РВВ (^{55}Fe) і РР (^{60}Co) у зразках відпрацьованих іонообмінних смол від різних партій відходів (ліворуч — 1993 р., праворуч — 2003 р.), на тлі загального тренду (кореляції) між логарифмами вмісту радіонуклідів за об'єднаною вибіркою даних [11]

Як свідчать відомі дані, верифікація РВ може бути застосована також з метою уточнення деяких КМ, що відповідають окремим РВВ, вміст яких за попередніми результатами не був виявлений ($< \text{МДА}$). Наявність у масиві даних частки результатів вимірювань у вигляді « $< \text{МДА}$ » суттєво ускладнює їхній статистичний аналіз і зменшує точність оцінки параметрів їхнього розподілу, отже, і ступінь надійності таких КМ. У роботі [18] на прикладі вмісту ^{241}Am у ТРВ Чорнобильської АЕС і застосування різних методичних підходів щодо розрахунку параметрів його розподілу це було наочно продемонстровано. Тому намагання провести верифікацію КМ, оцінених за даними, в яких присутні невизначені результати у вигляді « $< \text{МДА}$ », і зменшити їхню частку за результатами повторного пробовідбору виглядає цілком виправдано.

Слід відзначити ще один сучасний підхід до верифікації валідності діючих КМ, який базується на використанні методу Байеса [21]. Розрахунковий алгоритм перевірки побудований на припущенні про нормальність розподілу випадкових даних щодо відношення «вміст РВВ/вміст РР». Запропонована процедура дозволяє відслідковувати зміни параметрів розподілу цього відношення з часом та вносити відповідні зміни у попередньо оцінені середньгео-

метричні значення КМ. Запропонований алгоритм пройшов випробування й валідацію на радіоактивних металевих відходах у Європейській організації з ядерних досліджень (CERN).

Оцінюючи вищезазначений підхід з точки зору його доступності для практичного застосування, можна дійти висновку, що за складністю розрахунків він суттєво відрізняється від порядку обчислень, які можна виконати за допомогою стандартних комп'ютерних програм типу EXCEL MS Office та використання відомих статистичних таблиць (наприклад, у роботі [20]). Впровадження запропонованого алгоритму потребує залучення не тільки спеціалістів з математичної статистики, але й програмістів для реалізації необхідних розрахунків за допомогою програмних засобів. Це не применшує його цінності, однак відсутність детального опису цього складного алгоритму оцінки валідності КМ ускладнює його впровадження в систему характеристики ТРВ.

Висновки

Методологія застосування КМ передбачає виконання процедур верифікації та валідації даних на етапах створення масиву експериментальної інформації

щодо об'єкта характеристики. Що стосується технології використання РВ для паспортизації питомої та сумарної активності РВВ у складі ТРВ, чинні рекомендації МАГАТЕ лише декларують необхідність епізодичної чи систематичної перевірки та оновлення КМ, не пропонуючи чітких алгоритмів реалізації цієї процедури та термінів її проведення. Проте для системи поводження з радіоактивними відходами це один із найважливіших елементів забезпечення надійності радіологічної характеристики ТРВ за методологією МАГАТЕ і підвищення ефективності вхідного контролю відповідності рівнів їхнього радіонуклідного забруднення чинним критеріям приймання на захоронення.

В останні роки була проведена ціла низка експериментальних робіт, основним завданням яких була верифікація попередньо встановлених КМ та РВ для радіологічної характеристики партій ТРВ, що спрямовуються на захоронення, за методологією МАГАТЕ. Узагальнення досвіду проведення цих робіт дає змогу виділити базовий підхід та визначити покроковий порядок виконання верифікації, побудований на проведенні спеціального статистичного дослідження та застосування кількісних критеріїв порівняння параметрів розподілу даних щодо відношення «вміст РВВ / вміст РР» у ТРВ за попередніми та новими результатами вимірювань. Запропонований у роботі алгоритм дозволяє на підставі отриманих результатів перевірки прийняти статистично обґрунтоване рішення щодо подальшого застосування діючих КМ або визнання необхідності їхнього оновлення для характеристики нової партії відходів.

Список використаної літератури

1. Determination and use of scaling factors for waste characterization in NPP. IAEA Nuclear Energy Series NW-T-1.18. — Vienna : IAEA, 2009. — 142 p.
2. Михайлов А. В. Методология применения радионуклидных векторов для характеристики РАО АЭС / А. В. Михайлов, В. А. Краснов, В. Н. Безмылов // Ядерная энергетика та довкілля. — 2018. — № 2 (12). — С. 51–58.
3. Classification of radioactive waste: safety guide. — Vienna : IAEA, 2009. — Available at: https://www-pub.iaea.org/mtcd/publications/pdf/pub1419_web.pdf.
4. Derivation of activity limits for the disposal of radioactive waste in near surface disposal facilities. IAEA-TEC-DOC-1380. — Vienna : IAEA, 2003. — doi.org/10.7733/jnfcwt.2020.18.4.517.
5. Критерії приймання радіоактивних відходів на захоронення в спеціально обладнаному приповерхневому сховищі твердих радіоактивних відходів (СОПСТРВ). Перший етап експлуатації СОПСТРВ. Приймання РАВ від ЗПРРВ та ЗПТРВ ДСП «ЧАЕС» для захоронення в два симетричних відсіки СОПСТРВ. Редакція 5. Затверджено т. в. о. генерального директора УкрДО «Радон» — директором ДСП «Техноцентр» А. Д. Новіковим. — Чорнобиль, 2009. — 38 с.
6. Mykhailov O. V. New methodological approaches in solving certification problem of historical solid radioactive waste sent for burial from Chornobyl Nuclear Power Plant / O. V. Mykhailov, V. M. Bezmylov // Nuclear Power and the Environment. — 2020. — № 4 (19). — P. 39–49.
7. A new approach to characterize very-low-level radioactive waste produced at hadron accelerators / B. Zaffora, M. Magistris, J. Chevalier, [et al.] // Appl. Radiat. Isot. — 2017. — Vol. 122. — P. 141–147. — Available at: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01555113/document>.
8. Statistical methodologies for scaling factor implementation: Part 1. Overview of current scaling factor method for radioactive waste characterization / T. H. Kim, J. Park, J. Lee, [et al.] // Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology. — 2020. — Vol. 18. — No. 4. — P. 517–536. — doi.org/10.7733/jnfcwt.2020.18.4.517.
9. 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.org/10.3390/environments6110120.
10. 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.
11. 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. — No. 3. — P. 2467–2481. — doi.org/10.1007/s10967-014-3789-3.
12. Zaffora B. Statistical sampling applied to the radiological characterization of historical waste / B. Zaffora, M. Magistris, G. Saporta, F. La Torre // EPJ Nuclear Sci. Technol. — 2016. — Vol. 2. — No. 34. — P. 1–11. — doi.org/10.1051/epjn/2016031.
13. Kim T. Determination and verification of the scaling factor for the radionuclide inventory of the radioactive waste from nuclear power plants / T. Kim, K. Kang, J. Ha // Journal of Nuclear Science and Technology. — 2008. — Vol. 45. — Sup. 5. — P. 756–757. — doi.org/10.1080/00223131.2008.10875965.

14. Kim A. M. Nuclide vector for decommissioning and release measurements in Germany / A. M. Kim, F. Lietzmann // Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting (Goyang, Korea, October 24–25, 2019). — Available at: www.kns.org/files/pre_paper/42/19A-032-Andrea-Maria.pdf.
15. Михайлов О. В. Результати верифікації радіонуклідного вектора для характеристики твердих радіоактивних відходів ЧАЕС, що спрямовуються на захоронення / О. В. Михайлов // Ядерна енергетика та довкілля. — 2022. — Вип. 2 (24). — С. 43–53.
16. Система управления производственными процессами. Методика установления радионуклидных векторов для характеристики партий твердых радиоактивных отходов. СТП 2.035–2018. — Славутич : ГСП ЧАЭС, 2018. — 24 с. (редакция 2020 г.)
17. Principles of optimal sampling for characterization of solid radioactive waste of the Ignalina Nuclear Power Plant / E. Maceika, V. Remeikis, L. Juodis, [et al.] // Lithuanian J. Phys. — 2009. — Vol. 49. — P. 341–350. doi: [10.3952/lithjphys.49313](https://doi.org/10.3952/lithjphys.49313).
18. Михайлов О. В. Результати порівняльної оцінки алгоритмів розрахунку коефіцієнтів масштабування (scaling factors) для радіонуклідів, що важко вимірюються у відходах ЧАЕС, на прикладі ^{241}Am / О. В. Михайлов // Ядерна енергетика та довкілля. — 2021. — Вип. 2 (21). — С. 61–70.
19. Radiological characterization from a waste and materials. End-state perspective: practices and experience (NEA-7373). — Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2017. — 100 p. — Available at: www.oecd-nea.org/rwm/pubs/2017/7373-rad-char-pers.pdf.
20. Ross S. M. Introduction to probability and statistics for engineers and scientists. Third Edition / S. M. Ross. — USA : Elsevier Academic Press, 2004. — 641 p.
21. Bayesian framework to update scaling factors for radioactive waste characterization / B. Zaffora, S. Demeyer, M. Magistris [et al.] // Appl. Radiat. Isot. — 2020. — Vol. 159. — <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109092>.

To ensure the safety of repositories used for final disposal of solid radioactive waste (SRW) of nuclear power plants and other nuclear installations, the compliance of their radionuclide contamination levels with valid acceptance criteria has to be monitored. Scaling factors (SF) are used in many world countries to quickly solve the problems with radiological characterization of SRW subject to burial. To ensure the reliability of SF application in different countries, episodic or periodic verification and update of SF values is conducted.

The purpose of work is to substantiate the global experience of SF verification, which, according to the IAEA methodology, is used for certification of specific and total activity of difficult-to-measure radionuclides (DTM) in SRW batches destined for disposal.

The work addresses the current state of SF methodology application, and analyzes the main steps of its implementation. It was stated that current IAEA recommends declare the need for their verification and update of previously established SFs only, without offering any clear algorithms for implementation of this procedure and terms of its realization. However, in practice, such a procedure is used for radiological characterization of SRW in order to ensure quality guarantees in obtaining information regarding their radiation and other characteristics. This work also examines in detail the experience in applying the SF verification on the examples of several world countries. It was concluded that the verification should be a needed element in ensuring the reliability of SF use for radiological characterization of SRW. The experience of verification by means of SF validation using quantitative criteria is summarized. An algorithm is defined, according to which, and based on obtained results, it is possible to come to a statistically justified decision regarding the further use of existing SFs or recognition of a need in their updating for radiological characterization of new batch of waste.

Keywords: solid radwaste, difficult-to-measure radionuclides, specific activity, minimum detectable activity, scaling factor, verification.

O. V. Mykhailov, V. M. Bezmylov

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

Verification of Scaling Factors in Radiological Characterization of NPP Solid Radwaste Using IAEA Procedure. Overview of Modern Approaches

References

1. *Determination and use of scaling factors for waste characterization in NPP.* IAEA Nuclear Energy Series NW-T-1.18. Vienna: IAEA, 2009, 142 p.
2. Mykhailov O. V., Krasnov V. O., Bezmylov V. M. (2019). Theoretical and practical aspects in using scaling factor method to characterize operational solid radioactive waste

- producible at nuclear power plants. *Nuclear Power and the Environment*, vol. 13, no. 1, pp. 52–58. (in Rus).
3. IAEA (2009). Classification of radioactive waste: safety guide. Vienna: IAEA. Available at: www-pub.iaea.org/mtcd/publications/pdf/pub1419_web.pdf.
 4. IAEA (2003). *Derivation of activity limits for the disposal of radioactive waste in near surface disposal facilities*. IAEA-TECDOC-1380. Vienna: IAEA. doi.org/10.7733/jnfcwt.2020.18.4.517.
 5. *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 PTSRW 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.)
 6. 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.
 7. Zaffora B., Magistris M., Chevalier J., Saporta G., Lucioni C., Ulrici L. (2017). A new approach to characterize very-low-level radioactive waste produced at hadron accelerators. *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 122, pp. 141–147. Available at: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01555113/document>.
 8. Kim T. H., Park J., Lee J., Kim J., Kim J. Y., Lim S. H. (2020). Statistical methodologies for scaling factor implementation: Part 1. Overview of current scaling factor method for radioactive waste characterization. *Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology*, vol. 18, no. 4, pp. 517–536. doi.org/10.7733/jnfcwt.2020.18.4.517.
 9. 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. 6 (11), p. 120. doi.org/10.3390/environments6110120.
 10. 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.
 11. 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.org/10.1007/s10967-014-3789-3.
 12. Zaffora B., Magistris M., Saporta G., La Torre F. (2016). Statistical sampling applied to the radiological characterization of historical waste. *EPJ Nuclear Sci. Technol.*, vol. 2, no. 34, pp. 1–11. doi.org/10.1051/epjn/2016031.
 13. Kim T., Kang K., Ha J. (2008). Determination and verification of the scaling factor for the radionuclide inventory of the radioactive waste from nuclear power plants. *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 45, sup. 5, pp. 756–757. doi.org/10.1080/00223131.2008.10875965.
 14. Kim A. M., Lietzmann F. (2019). Nuclide vector for decommissioning and release measurements in Germany. Proceedings of the *Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting (Goyang, Korea, October 24–25, 2019)*. Available at: www.kns.org/files/pre_paper/42/19A-032-AndreaMaria.pdf.
 15. Mykhailov O. V. (2022). [Results of radionuclide vector verification to characterize solid radwaste of Chornobyl Nuclear Power Plant sent for burial]. *Nuclear Power and the Environment*, vol. 2 (24), pp. 43–53. (in Ukr.)
 16. *Production process control system. Methodology for the determination of radionuclide vectors for the characterization of batches of solid radioactive waste*. STP 2.035–2018. Slavutych: SSE “ChNPP”, 2018, 24 p. (revised 2020).
 17. Maceika E., Remeikis V., Juodis L., Gudelis A., Plukis A., Plukiene R., Duškesas G., Baltrunas D. (2009). Principles of optimal sampling for characterization of solid radioactive waste of the Ignalina Nuclear Power Plant. *Lithuanian J. Phys.*, vol. 49, pp. 341–350. doi.org/10.3952/lithjphys.49313.
 18. Mykhailov O. V. (2021). [Results of comparative evaluation of algorithms for calculating scaling factors of difficult-to-measure nuclides in ChNPP wastes at ²⁴¹Am example]. *Nuclear Power and the Environment*, vol. 2 (21), pp. 61–70. (in Ukr.)
 19. OECD (2017). *Radiological characterization from a waste and materials. End-state perspective: practices and experience (NEA-7373)*. Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 100 p. Available at: www.oecd-nea.org/rwm/pubs/2017/7373-rad-char-pers.pdf.
 20. Ross S. M. (2004). *Introduction to probability and statistics for engineers and scientists*. Third Edition. USA: Elsevier Academic Press, 641 p.
 21. Zaffora B., Demeyer S., Magistris M., Ronchetti E., Saporta G., Theis C. (2020). A Bayesian framework to update scaling factors for radioactive waste characterization. *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 159. doi.org/10.1016/j.apradi-so.2020.109092.

Надійшла 15.02.2023

Received 15.02.2023