

**ПОГРЕШНОСТЬ ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ НЕОДНОРОДНО  
ЗАГРЯЗНЕННЫХ ПРОБ ПОЧВЫ****Ю. В. Хомутинин***Украинский научно-исследовательский институт  
сельскохозяйственной радиологии (УкрНИИСХР), Киев*

Рассмотрены вопросы достоверности измерения  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и отношения  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  в пробах почвы, содержащих “горячие” частицы. Показано, что отбираемые пробы почвы имеют объемную неоднородность загрязнения, не устраняемую при гомогенизации. Распределение возможных значений удельной активности пробы подчиняется логнормальному закону. Предложен метод расчета минимально необходимого числа образцов пробы почвы для оценки медианы измеряемой активности с заданной погрешностью.

Одной из особенностей Чернобыльской катастрофы стало загрязнение окружающей среды радиоактивными частицами. Это либо мелкодиспергированное ядерное топливо (топливные частицы), либо изначально инертные аэрозольные частицы, ставшие во время аварии центрами конденсации высокоподвижных летучих радионуклидов (конденсационные частицы). Эти частицы имеют значительно более высокую активность, чем почва в целом, и они получили название – “горячие” частицы. В общем случае “горячие” частицы – это частицы любого происхождения, имеющие повышенную удельную активность по сравнению со средней удельной активностью пробы. Несмотря на значительное время, прошедшее с момента аварии на ЧАЭС, “горячие” частицы и сейчас являются важным фактором загрязнения почвы, в особенности в границах 30-километровой зоны ЧАЭС [1, 2]. Наличие в пробах таких частиц может существенно влиять на достоверность результата единичного измерения, поскольку стандартный процесс гомогенизации пробы при подготовке ее к измерению [3] не может обеспечить однородности распределения активности во всем объеме пробы. При этом приборная погрешность измерения активности образца (части пробы) уже не характеризует реальную погрешность определения радионуклида в пробе. Поэтому необходимо найти более объективные оценки погрешности содержания того или иного радионуклида в пробе, содержащей “горячие” частицы, при  $\gamma$ -спектрометрических и радиохимических измерениях.

В качестве основных приемов выявления в пробе почвы “горячих” частиц (наличие объемной неоднородности загрязнения) в настоящее время используются метод деления пробы на несколько частей (далее – метод деления) и метод перемешиваний измеряемого образца (при  $\gamma$ -спектрометрии) [4, 5]. Имеются также и теоретические исследования статистической достоверности результатов  $\gamma$ -спектрометрических измерений образцов почвы, содержащих “горячие” частицы, полученные для метода последовательных перемешиваний измеряемого образца [6].

В настоящей работе сделана попытка оценить погрешность определения медианы удельной активности единичной пробы почвы, содержащей “горячие” частицы, и определить минимально необходимое число измеряемых образцов для оценки этой медианы в реальных условиях радиоактивных чернобыльских выпадений с заданной погрешностью.

**Распределение возможных значений активности почвенной пробы**

Хотя содержание того или иного радионуклида в пробе почвы величина реальная, ее значение неизвестно исследователю. О ней судят по результатам измерения образцов, взятых от пробы (в лучшем случае всей пробы). Результаты измерения этих образцов, особенно содержащих “горячие” частицы, является случайной величиной и подчиняется некоторому закону распределения вероятностей. Это обусловлено случайной погрешностью измерений,

случайным попаданием “горячих” частиц различной активности в измеряемый образец и случайным расположением “горячих” частиц различной активности по отношению к детектору при  $\gamma$ -спектрометрии и т.д. Для получения достоверной оценки (доверительных границ) удельной активности почвенной пробы по измерениям ее образцов очень важно знать тип распределения, которому подчиняются результаты измерения.

В работах [4, 5], при расчете вероятности обнаружения в пробе топливных частиц методом деления и методом перемешивания измеряемого образца для аппроксимации получаемых значений активности использовалось логнормальное распределение. Проведенные теоретические исследования по моделированию метода перемешиваний измеряемого образца, содержащего “горячие” частицы, показали, что распределение регистрируемой активности имеет явно выраженную правостороннюю асимметрию [6]. При моделировании предполагалось, что после каждого измерения материал образца выгружается из измерительного сосуда, перемешивается в условиях, предотвращающих его потерю, и загружается обратно для следующего измерения. Получаемые для различных расчетных случаев распределения удовлетворительно аппроксимируются логнормальным законом.

В УкрНИИСХР были проведены экспериментальные исследования по изучению объемной неоднородности радиоактивного загрязнения почвенных проб, содержащих “горячие” частицы [7]. В экспериментах использовались реальные почвенные пробы, отобранные на территориях, где практически отсутствует топливная компонента радиоактивного загрязнения (Кировоградская обл. –  $\approx 50$  Бк/кг  $^{137}\text{Cs}$ ; Киевская обл., с. Бобер –  $\approx 1700$  и  $\approx 4900$  Бк/кг  $^{137}\text{Cs}$ ). После стандартной пробоподготовки от каждой пробы почвы было взято по одному измеряемому образцу объемом  $1000\text{ см}^3$  ( $O_1$ ,  $O_2$  и  $O_3$ ) и проведено три серии измерений: одна контрольная и две с искусственно внесенными частицами. Перед второй серией измерений в каждый образец было добавлено по одной топливной частице –  $152 \pm 11$  Бк  $^{137}\text{Cs} \rightarrow O_1$ ,  $1310 \pm 39$  Бк  $^{137}\text{Cs} \rightarrow O_2$ ;  $1060 \pm 21$  Бк  $^{137}\text{Cs} \rightarrow O_3$ ; перед третьей серией измерений – еще по одной топливной частице:  $151 \pm 9$  Бк  $^{137}\text{Cs} \rightarrow O_1$ ,  $410 \pm 16$  Бк  $^{137}\text{Cs} \rightarrow O_2$ ,  $538 \pm 22$  Бк  $^{137}\text{Cs} \rightarrow O_3$ . Измерение  $^{137}\text{Cs}$  как с искусственно внесенными частицами, так и без них проводилось на  $\gamma$ -спектрометре по 25 раз в двух геометриях: цилиндрическом измерительном сосуде и в сосуде Маринелли объемом по  $1000\text{ см}^3$ . После каждого измерения почва высыпалась, перемешивалась в условиях, предотвращающих потерю, и загружалась в сосуд для следующего измерения.

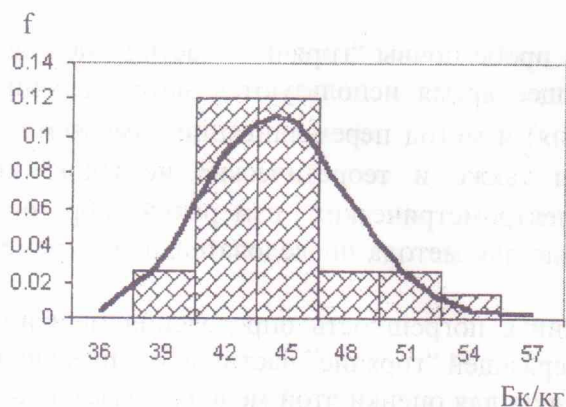


Рис. 1. Распределение результатов измерения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в образце почвы при отсутствии топливных частиц (сосуд Маринелли объемом  $1000\text{ см}^3$ , почва Кировоградской обл.).

Результаты измерения активности образца каждой почвы в сосуде Маринелли и в цилиндрическом сосуде удовлетворительно описываются логнормальным законом как без топливных частиц, так и с искусственным внесением их. На рис. 1 в качестве примера показана гистограмма и соответствующее ей теоретическое логнормальное распределение удельной активности для почвы, взятой в наиболее удаленной точке от ЧАЭС, где случайное попадание топливной частицы наименее вероятно. Для других образцов правосторонняя асимметрия распределения выражена более четко.

При проведении работ по картированию загрязнения 30-километровой зоны ЧАЭС  $^{90}\text{Sr}$  [8] сотрудниками УкрНИИСХР было отобрано более 1300 проб почвы. Для измерения в них содержания  $^{137}\text{Cs}$  на  $\gamma$ -спектрометре от каждой пробы было взято по четыре параллельных образца: три цилиндрических сосуда объемом по  $100\text{ см}^3$  и один сосуд Маринелли объемом  $1000\text{ см}^3$ .

Результаты измерений считались удовлетворительными, если относительный разброс между значениями удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в параллельных образцах не превышал 15 %. В противном случае их снова смешивали, тщательно гомогенизировали и снова измеряли по той же схеме. Такая процедура является комбинацией метода деления пробы и метода перемешиваний (далее – обобщенный метод). При одной итерации она совпадает с “методом деления” пробы. Из банка данных, созданного на основе всех полученных результатов, для оценки типа распределения возможных значений удельной активности пробы были отобраны те пробы, которые перемешивали и измеряли больше одного раза. В результате получилась выборка проб почвы ( $n \approx 200$ ) с повышенной объемной неоднородностью загрязнения. Статистический анализ результатов измерений в цилиндрическом сосуде объемом  $100 \text{ см}^3$  активности образцов проб почвы, взятых из этой выборки, показал, что они удовлетворительно описываются логнормальным законом распределения вероятностей. На рис. 2 полученный результат проиллюстрирован для образцов, взятых от пробы почвы, отобранной в 30-километровой зоне на юго-западном конденсационном следе.

Из точек, принадлежащих тому или иному следу радиоактивных выпадений, были сформированы четыре множества, характеризующие западный, северный, южный и юго-западный конденсационные следы. Для каждого множества значения удельной активности  $^{137}\text{Cs}$ , полученные для образцов, взятых от одной пробы, были нормированы на свою эмпирическую медиану и объединены в единую выборку, характеризующую тот или иной след. Для каждого множества был проанализирован вид распределения вероятностей возможных значений удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в пробах. Результаты статистического анализа показали, что гистограммы выборок каждого множества также удовлетворительно описываются логнормальным законом. На рис. 3 в качестве примера приведен результат такого анализа для нормированной активности образцов проб почвы всего юго-западного следа.

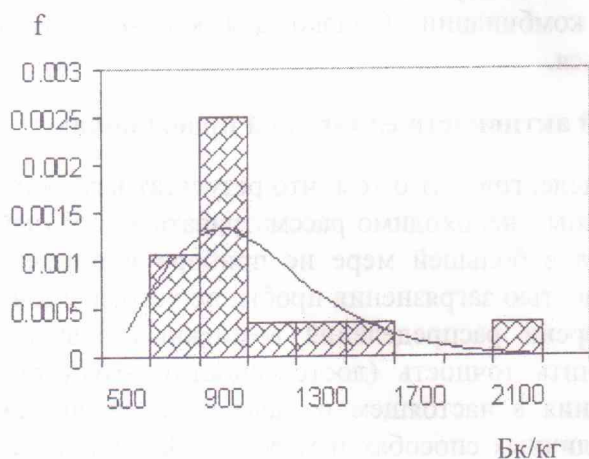


Рис. 2. Распределение значений удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  в пробе почвы, отобранной на юго-западном конденсационном следе (с. Старая Крапница), по измерениям ее образцов.

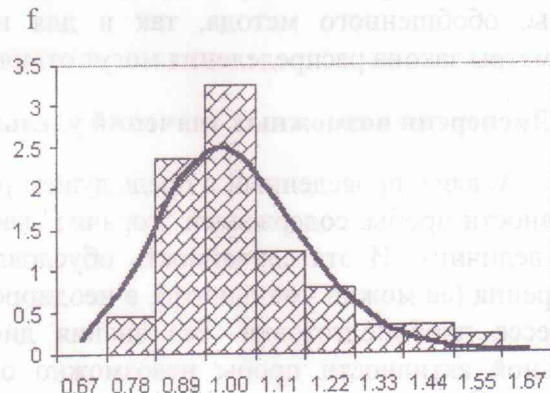


Рис. 3. Распределение нормированных на медиану значений удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  для образцов почвенных проб, отобранных на юго-западном конденсационном следе.

При проведении в УкрНИИСХР исследований по изучению кинетики растворения чернобыльских топливных частиц и выщелачиванию из них радионуклидов в различных почвах зоны отчуждения [9] было отобрано 115 проб почвы на основных следах радиоактивных выпадений (западном, северном и южном) и на удалении от ЧАЭС до 50 км. От каждой пробы было взято три образца объемом по  $100 \text{ см}^3$ , в которых была измерена активность  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  (метод деления). Содержание  $^{137}\text{Cs}$  в образцах определялось  $\gamma$ -спектрометрией, а содержание  $^{90}\text{Sr}$  – радиохимией. Для определения типа распределения возможных значений удельной активности в почвенной пробе полученные результаты измерений содержания  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  в образцах каждой пробы были нормированы на

медианное значение для всей пробы и объединены в одну выборку. Статистический анализ объединенных выборок показал, что нормированное содержание в единичной пробе как  $^{137}\text{Cs}$ , так и  $^{90}\text{Sr}$  также удовлетворительно описываются логнормальным законом распределения вероятностей (рис. 4).

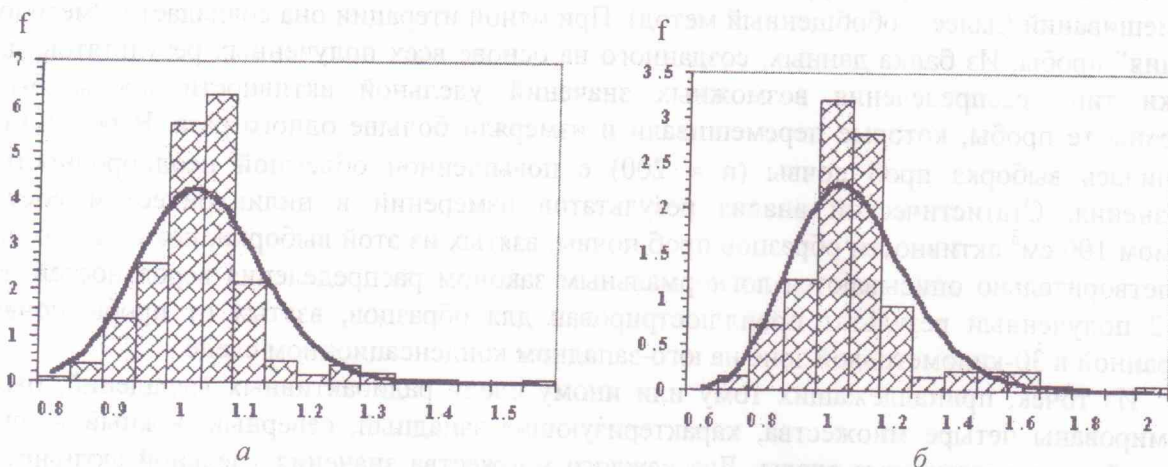


Рис. 4. Распределения нормированных на медиану значений удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  (а) и  $^{90}\text{Sr}$  (б) в образцах почвенных проб, полученные по результатам [9].

Таким образом, для проб почвы, содержащих “горячие” частицы, результат измерения активности взятых от них образцов характеризует содержание того или иного радионуклида в пробе только с точностью до некоторого распределения вероятностей. Это распределение является мерой полученной информации (мерой знаний) об удельном содержании радионуклида в пробе и удовлетворительно описывается логнормальным законом распределения вероятностей. При  $\gamma$ -спектрометрии это утверждение справедливо как для метода деления пробы, обобщенного метода, так и для их комбинации. Однако для каждого случая параметры закона распределения могут отличаться.

#### Дисперсия возможных значений удельной активности единичной пробы почвы

Анализ, проведенный в предыдущем разделе, говорит о том, что результат измерения активности пробы, содержащей “горячие” частицы, необходимо рассматривать как случайную величину. И эта случайность обусловлена в большей мере не приборной ошибкой измерения (ее можно уменьшить), а неоднородностью загрязнения пробы, не устраняемой в процессе пробоподготовки. Без знания дисперсии распределения возможных значений удельной активности пробы невозможно оценить точность (достоверность) результатов измерения. Поэтому предметом нашего внимания в настоящем разделе будет дисперсия логарифма удельной активности пробы при различных способах измерения. Величина этой дисперсии, в общем случае, определяется наличием в пробе “горячих” частиц (их размерами и количеством), геометрией (при  $\gamma$ -спектрометрии) и объемом измеряемого образца, приборной погрешностью измерения.

Общую дисперсию логарифма оценки удельной активности пробы, содержащей “горячие” частицы,  $s_{об.пр.}^2$ , обусловленную всеми случайными факторами, представим в виде

$$s_{об.пр.}^2 = s_{н.пр.}^2 + s_{изм.}^2, \quad (1)$$

где  $s_{н.пр.}^2$  – дисперсия, обусловленная неоднородностью загрязненной пробы (наличием “горячих” частиц);  $s_{изм.}^2 \cong \left( \frac{\delta_{изм.}}{z \cdot 100} \right)^2$  – дисперсия, обусловленная относительной приборной

погрешностью измерения удельной активности образца  $\delta_{изм}$ , взятой на уровне  $\pm z \cdot \sigma$ . При проведении измерений в УкрНИИСХР  $z = 2$ .

Величина  $s_{н.нр.}$  является показателем объемной неоднородности загрязнения пробы тем или иным радионуклидом. На рис. 5 приведены значения этого показателя, полученные в описанных выше экспериментах по искусственному загрязнению почвенных образцов топливными частицами, при измерении их активности методом последовательных перемешиваний. Приборная погрешность измерения образцов была 4 - 10 % без частиц и 2 - 4 % с частицами на уровне  $2\sigma$ . Проведенные эксперименты показывают, что реальная относительная погрешность определения активности пробы при однократном измерении взятого от нее образца может превышать приборную относительную погрешность, обычно принимаемую за погрешность определения активности в пробе, в семь и более раз.

Следует подчеркнуть, что и в отсутствии топливных частиц показатели объемной неоднородности загрязнения образцов взятых почв, хотя и незначительные, но соизмеримы с погрешностями измерения. Причины этого факта до конца не ясны и их установление, по видимому, требует более тонких экспериментов.

На рис. 6 показаны значения показателя  $s_{н.нр.}$  при измерении удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  для различных следов радиоактивных выпадений как для полной выборки, так и для выборки с повышенной объемной неоднородностью загрязнения, взятых из банка данных УкрНИИСХР. Из него видно, что для топливных следов выпадений величина  $s_{н.нр.}^{Cs}$  в целом несколько больше, чем для других частей 30-километровой зоны. Незначительное отличие этого показателя для различных частей 30-километровой зоны говорит о том, что вероятность нахождения в отобранной пробе почвы "горячих" частиц существенна для любого места зоны. Это косвенно подтверждается тем, что среднее значение этого показателя для проб почвы, отобранных с. Бобер и его окрестностях (конденсационный след) при измерении в цилиндрическом сосуде объемом  $100\text{ см}^3$  равен 0,03, что более чем в четыре раза меньше, чем для малозагрязненного юго-западного направления 30-километровой зоны ( $s_{н.нр.}^{Cs} = 0,133$ ).

Результаты, полученные по выборке проб с повышенной объемной неоднородностью, являются консервативными (несколько завышенными) оценками для соответствующих параметров. Консервативные оценки  $s_{н.нр.}^{Cs}$  (для совокупности проб, в которых многократно измерялось содержание  $^{137}\text{Cs}$  в обеих геометриях) для сосуда Маринелли объемом  $1000\text{ см}^3$  в среднем в 1,3 раза ниже, чем при измерении в цилиндрическом сосуде объемом  $100\text{ см}^3$ . Это соотношение ниже было использовано и для получения в первом приближении усредненных оценок  $s_{н.нр.}^{Cs}$  по полной выборке для сосуда Маринелли объемом  $1000\text{ см}^3$ .

Данные, полученные при изучении кинетики растворения чернобыльских топливных частиц в почвах зоны отчуждения [9], позволяют оценить величину  $s_{н.нр.}$  для  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  и их

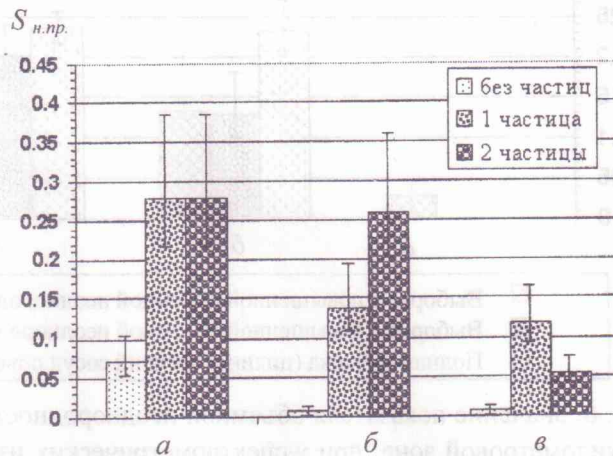


Рис. 5. Значение показателя объемной неоднородности загрязнения почвенных образцов  $^{137}\text{Cs}$  при искусственном внесении топливных частиц в сосуде Маринелли объемом  $1000\text{ см}^3$ : а – образец почвы Кировоградской обл.; б – 1-й образец почвы, с. Бобер Киевской обл.; в – 2-й образец почвы, с. Бобер Киевской обл.

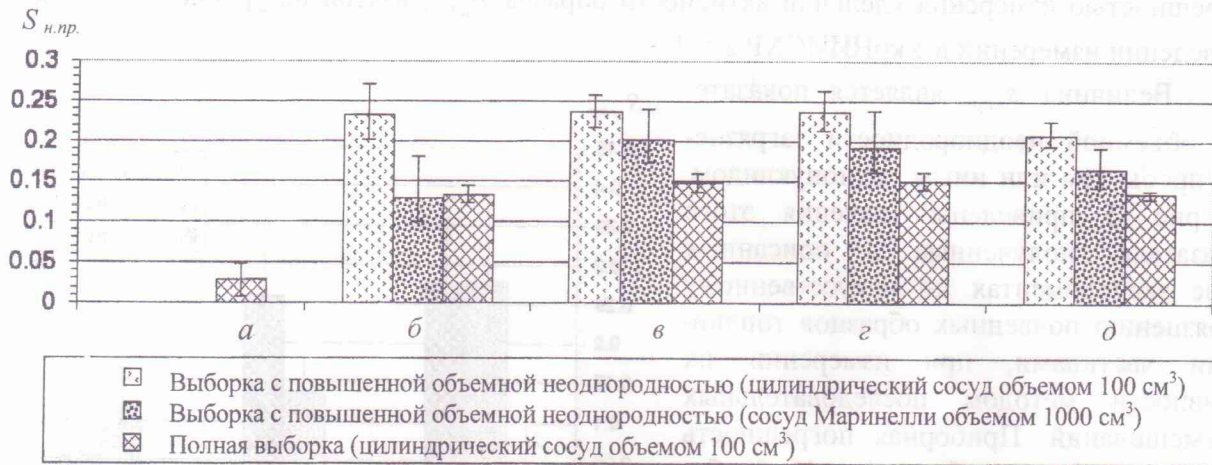


Рис. 6. Значение показателя объемной неоднородности загрязнения проб почвы <sup>137</sup>Cs, отобранных в 30-километровой зоне, при  $\gamma$ -спектрометрических измерениях их активности в сосудах различной геометрии: а – конденсационный след (с. Бобер); б – юго-западный конденсационный след; в – южный топливный след; г – западный топливный след; д – другие территории 30-километровой зоны.

отношения по результатам измерения одних и тех же почвенных образцов, содержащих “горячие” частицы, а также оценить влияние доли топливной компоненты на эти оценки. Медианные оценки для  $s_{об.пр.}^2$  в почвенной пробе были получены на основе размаха в соответствии с имеющимися выводами математической статистики [10]. Поскольку в каждой пробе своя доля топливной компоненты (средняя погрешность ее определения составляла 10%), то результаты измерений были сгруппированы. В результате были получены усредненные по группам значения  $s_{н.пр.}$  (рис. 7). Из приведенного рисунка видно, что при возрастании доли топливной компоненты величина  $s_{н.пр.}$  растет как для <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr, так и для их отношения. Это вполне естественно, если в пробу попало несколько топливных частиц, которые в основном определяют активность пробы, то ее объемная неоднородность будет очень высокой (см. результаты по искусственному внесению в пробу топливных частиц).

Различие между величинами  $s_{н.пр.}^{Cs}$  и  $s_{н.пр.}^{Sr}$  начинается при доле топливной компоненты более 10 %, при менее 10 %  $s_{н.пр.}^{Sr} \cong s_{н.пр.}^{Cs}$ . Сглаженное влияние доли топливной

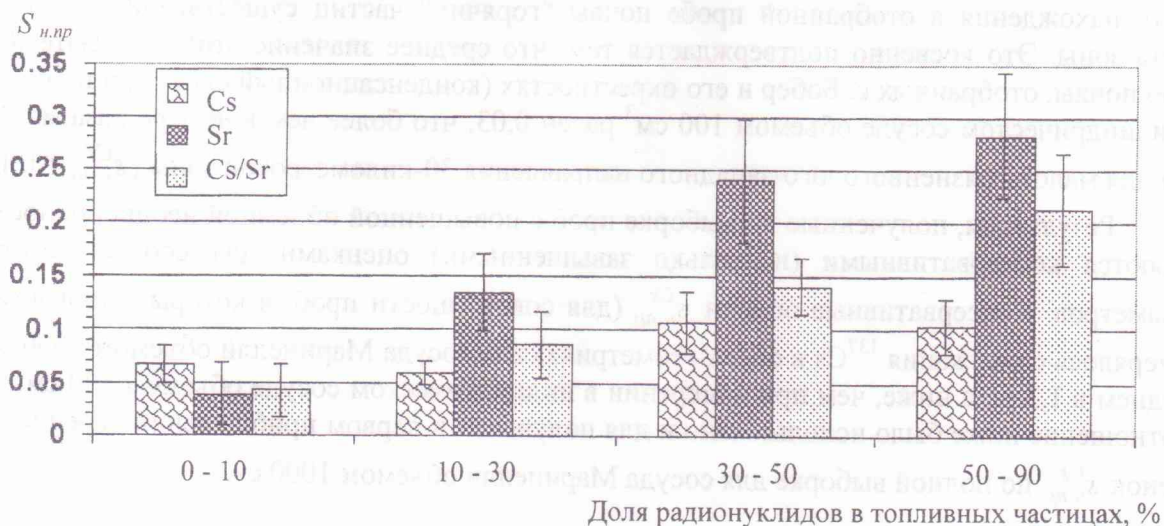


Рис. 7. Влияние доли топливной компоненты на объемную неоднородность загрязнения пробы почвы при определении удельной активности <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr и их отношения.

компоненты на величину  $s_{н.нр.}^{Cs}$  обусловлено наличием значительной части активности  $^{137}Cs$  в составе конденсационной (растворимой) компоненты загрязнения почвы радионуклидами. С течением времени происходит постепенное растворение топливных частиц;  $^{137}Cs$  в основном фиксируется почвой, а  $^{90}Sr$  особенно в песчаных почвах мигрирует в более глубокие слои. Поэтому объемная неоднородность загрязнения пробы почвы верхнего слоя по  $^{137}Cs$  в целом будет менее выражена, чем  $^{90}Sr$ , до полного растворения топливных частиц. Вместе с тем с течением времени и уменьшением доли топливной компоненты величина  $s_{н.нр.}$  для  $^{137}Cs$  и  $^{90}Sr$  и их отношения будет уменьшаться и стремиться к 0,05.

Искомая общая дисперсия логарифма возможных значений удельной активности  $^{137}Cs$ ,  $^{90}Sr$  и их отношения в почвенной пробе вычисляется согласно выражению (1). При этом  $s_{изм}^2 Cs/Sr = s_{изм}^2 Cs + s_{изм}^2 Sr$ . При  $\delta_{изм} \leq 10\%$  на уровне  $\pm 2\sigma$  относительная погрешность определения указанных величин в пробе практически полностью определяется дисперсией  $s_{н.нр.}^2$ , пренебрежение которой может привести к серьезным ошибкам при интерпретации результатов измерения. Тот факт, что величина  $s_{н.нр.}^{Cs/Sr}$  находится между величинами  $s_{н.нр.}^{Cs}$  и  $s_{н.нр.}^{Sr}$ , объясняется чисто статистическими свойствами рассматриваемых оценок. Для разности коррелированных случайных величин (какими являются  $\ln(Cs)$  и  $\ln(Sr)$  в пробе)

справедливо соотношение  $s_{об.нр.}^{Cs/Sr} = \sqrt{(s_{об.нр.}^{Cs})^2 + (s_{об.нр.}^{Sr})^2} - 2 \cdot r_{\ln(Cs), \ln(Sr)} \cdot s_{об.нр.}^{Cs} \cdot s_{об.нр.}^{Sr}$ , где  $r_{\ln(Cs), \ln(Sr)}$  - соответствующий коэффициент корреляции, равный в данном случае 0,94.

На топливных следах радиоактивных чернобыльских выпадений содержание  $^{90}Sr$  в почве обусловлено в основном наличием его в топливной компоненте. Поскольку выщелачивание других радионуклидов топливной матрицы (в частности,  $^{239+240}Pu$ ) происходит параллельно  $^{90}Sr$ , то для показателей объемной неоднородности пробы почвы по этим радионуклидам будет наблюдаться аналогичная картина (см. рис. 7), возможно, с некоторой поправкой на их миграционную способность. В первом приближении можно считать, что на топливных следах  $s_{н.нр.}^{Sr} \cong s_{н.нр.}^{Pu}$ .

Таким образом, показатель объемной неоднородности загрязнения почвенной пробы  $s_{н.нр.}^{Cs}$  (при  $\gamma$ -спектрометрии) для обобщенного метода при измерении цилиндрического образца объемом  $100 \text{ см}^3$  в целом для 30-километровой зоны (см. рис. 6) в первом приближении оценивается величиной  $0,14 \pm 0,01$  (средняя оценка),  $0,23 \pm 0,03$  (консервативная оценка). Соответствующие оценки при измерении сосуда Маринелли объемом  $1000 \text{ см}^3$  равны  $0,11 \pm 0,02$  (средняя оценка),  $0,17 \pm 0,03$  (консервативная оценка). Здесь и далее погрешности оценок  $s_{н.нр.}$  взяты на уровне  $2\sigma$ . Поскольку в проанализированных пробах не определялась доля активности, обусловленная топливными частицами, эти оценки соответствуют среднему содержанию топливной компоненты в почвенных пробах 30-километровой зоны. Для проб, в которых измерялась доля топливной компоненты (см. рис. 7), соответствующие средние по всей выборке значения показателя объемной неоднородности почвенной пробы  $s_{н.нр.}^{Cs} = 0,1 \pm 0,02$ ,  $s_{н.нр.}^{Sr} = 0,20 \pm 0,04$ ,  $s_{н.нр.}^{Cs/Sr} = 0,15 \pm 0,03$  (метод деления пробы, образец  $100 \text{ см}^3$ ). Полученное для этой выборки значение  $s_{н.нр.}^{Cs}$  близко к вышеприведенной оценке  $0,14 \pm 0,01$ , однако оно несколько ниже. Это может быть объяснено двумя причинами. Первая, использовались разные подходы к определению дисперсии удельного содержания  $^{137}Cs$  в почвенной пробе. Вторая более высокая оценка получена по результатам измерения проб, отобранных равномерно по всей 30-километровой зоне, а более низкая получена по результатам измерения проб, отобранных на разных типах почв, места отбора которых

располагались неравномерно по зоне. Близость полученных оценок позволяет утверждать: полученные средние оценки величин  $s_{н.нр.}^{Sr}$  и  $s_{н.нр.}^{Cs/Sr}$  (см. рис. 7) в первом приближении справедливы для всей территории 30-километровой зоны; величины  $s_{н.нр.}^{Cs}$ ,  $s_{н.нр.}^{Sr}$  и  $s_{н.нр.}^{Cs/Sr}$  в первом приближении одинаковые как при использовании метода деления, так и обобщенного метода определения загрязнения почвенной пробы. В дальнейшем для величины  $s_{н.нр.}^{Cs}$  (образцы объемом по 100 см<sup>3</sup>) будем пользоваться более консервативной оценкой  $0,14 \pm 0,01$ . Для конденсационных следов вне 30-километровой зоны (доля топливной компоненты меньше 10 %) показатели неоднородности загрязнения пробы  $s_{н.нр.}^{Cs}$  (для обеих геометрий) и  $s_{н.нр.}^{Sr}$  в первом приближении (консервативная оценка) можно оценить усредненной величиной  $0,05 \pm 0,03$  (см. рис. 4 и 5).

Интервал, в котором с вероятностью  $p$  находится возможное значение удельной активности почвенной пробы  $C$ ,  $\exp(\bar{\mu} - u_p \cdot s_{об.нр.}) \leq C \leq \exp(\bar{\mu} + u_p \cdot s_{об.нр.})$ , где  $\bar{\mu}$  – среднее значение логарифма удельной активности пробы. Ввиду правой асимметрии распределения возможных значений удельной активности пробы в качестве точечной оценки ее истинного значения целесообразно использовать эмпирическую медиану  $\exp(\bar{\mu})$ , так как эмпирическое среднее дает завышенное значение.

#### Минимально необходимое число измерений для оценки медианы удельной активности почвенной пробы, содержащей “горячие” частицы

При известной дисперсии  $s_{об.нр.}^2$  в соответствии со статистическими выводами [10] доверительный интервал для истинного значения логарифма удельной активности пробы  $\mu$  при измерении  $n$  образцов определяется выражением  $\bar{\mu} - \frac{u_p \cdot s_{об.нр.}}{\sqrt{n}} \leq \mu \leq \bar{\mu} + \frac{u_p \cdot s_{об.нр.}}{\sqrt{n}}$ , где  $p$  – доверительная вероятность. Отсюда истинное значение удельной активности почвенной пробы лежит в интервале  $\exp\left(\bar{\mu} - \frac{u_p \cdot s_{об.нр.}}{\sqrt{n}}\right) \leq C \leq \exp\left(\bar{\mu} + \frac{u_p \cdot s_{об.нр.}}{\sqrt{n}}\right)$ . Этот интервал не симметричен относительно точечной оценки  $\exp(\bar{\mu})$ , поэтому ее верхняя и нижняя погрешности удельной активности имеют различное значение  $\Delta_+ = \delta_+ \cdot \exp(\bar{\mu})$  и  $\Delta_- = \delta_- \cdot \exp(\bar{\mu})$ , где  $\delta_+ = \exp\left(\frac{u_p \cdot s_{об.нр.}}{\sqrt{n}}\right) - 1$  и  $\delta_- = 1 - \exp\left(-\frac{u_p \cdot s_{об.нр.}}{\sqrt{n}}\right)$  – относительные погрешности определения удельной активности почвенной пробы. Измеренное значение удельной активности пробы с учетом погрешности определения будет иметь вид  $\exp(\bar{\mu}) \pm \frac{\Delta_+}{2}$ . Далее в расчетах используется верхняя (консервативная) относительная погрешность  $\delta_+$ . На основе приведенных соотношений можно рассчитать минимальное число измерений (образцов), необходимое для оценки медианы удельного содержания радионуклида в пробе почвы с заданной относительной погрешностью  $\delta_+$  и доверительной вероятностью  $p$

$$n \geq \left\{ \frac{U_p \cdot s_{н.нр.}}{\ln(1 + \delta_+)} \right\}^2 + \left\{ \frac{0,005 \cdot U_p \cdot \delta_{изм}}{\ln(1 + \delta_+)} \right\}^2 = n_{н.нр.} + n_{изм.}, \quad (2)$$

где  $n_{н.нр.}$  ( $n_{изм.}$ ) – число измеряемых образцов, обусловленное объемной неоднородностью пробы (приборной погрешностью измерения соответственно);  $\delta_{изм.}$  взята на уровне  $\pm 2\sigma$ , так как в существующих методиках измерения, как правило, принята такая погрешность.



Пусть необходимо рассчитать минимально необходимое число измеряемых образцов для определения содержания  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  в пробе почвы с заданной относительной погрешностью  $\delta_+$ , равной 20 %, при доверительной вероятности 0,95. Проба отобрана в 30-километровой зоне и содержит топливные частицы. Измерения образцов могут быть проведены с относительной погрешностью 10 и 30 % на уровне  $\pm 2\sigma$ . Используя выражение (2) получаем\*:

если  $^{137}\text{Cs}$  измеряется в цилиндрических образцах объемом по  $100\text{ см}^3$ , то их должно быть не менее двух (пяти) при относительной погрешности измерения 10 % или не менее трех (шести) при относительной погрешности измерения 30 %;

если  $^{137}\text{Cs}$  измеряется в сосудах Маринелли объемом по  $1000\text{ см}^3$ , то их должно быть не менее одного (трех) при относительной погрешности измерения 10 % или не менее трех (четырёх) при относительной погрешности измерения 30 %;

если для измерения  $^{90}\text{Sr}$  от пробы берутся образцы объемом по  $100\text{ см}^3$ , то их должно быть не менее трех при относительной погрешности измерения 10 % или не менее пяти при относительной погрешности измерения 30 %.

Следует отметить, если проба отобрана за пределами 30-километровой зоны ЧАЭС на кондиционном следе, то для оценки содержания  $^{137}\text{Cs}$  в такой пробе при тех же требованиях к погрешности определения достаточно одного образца при измерении в любой геометрии и  $\delta_{\text{изм}} < 10\%$  даже при максимальном значении  $s_{\text{н.пр.}}^{\text{Cs}} = 0,08$ .

Поскольку общее число регистрируемых распадов пропорционально времени измерения, а их число в единицу времени подчиняется распределению Пуассона, для которого дисперсия равна математическому ожиданию, то нетрудно получить, что соотношение между временами одного измерения, которые обеспечивают погрешности  $\delta_{\text{изм},t_1}$  и  $\delta_{\text{изм},t_2}$ , имеет вид

$$\frac{t_2}{t_1} = \left( \frac{\delta_{\text{изм},t_1}}{\delta_{\text{изм},t_2}} \right)^2. \quad (3)$$

Отсюда общее минимально необходимое время для определения с относительной погрешностью 20 % содержания  $^{137}\text{Cs}$  в одной пробе почвы, отобранной в 30-километровой зоне ЧАЭС, в случае консервативных оценок числа минимально необходимых измерений будет:

в 7,5 раза больше при измерении пяти цилиндрических образцов объемом по  $100\text{ см}^3$  с погрешностью 10 %, чем шесть аналогичных образцов с погрешностью 30 %;

в 6,8 раза больше при измерении трех сосудов Маринелли объемом по  $1000\text{ см}^3$  с погрешностью 10 %, чем четыре аналогичных образца с погрешностью 30 %.

Таким образом, с точки зрения временных затрат для достижения одного и того же результата выгоднее измерять больше образцов но с меньшей точностью. С этой же точки зрения намного выгоднее (если нет ограничений по объему пробы) проводить измерения в сосуде Маринелли объемом  $1000\text{ см}^3$ , чем в цилиндрическом сосуде объемом  $100\text{ см}^3$ .

В заключение необходимо отметить следующее. Если от пробы почвы (с топливными частицами) берется и измеряется только один образец (как это делается обычно) с погрешностью  $< 10\%$  на уровне  $\pm 2\sigma$ , то погрешность определения содержания  $^{137}\text{Cs}$  в пробе при доверительной вероятности  $p = 0,95$  и средних оценках  $s_{\text{н.пр.}}^{\text{Cs}}$  составляет  $\delta_- \cong 25\%$  ( $\delta_+ \cong 33\%$ ) при измерении цилиндрического образца объемом  $100\text{ см}^3$  и  $\delta_- \cong 22\%$  ( $\delta_+ \cong 28\%$ ) при измерении сосуда Маринелли объемом  $1000\text{ см}^3$ .

\* Результат округлен до ближайшего целого, в скобках – консервативные оценки.

## Выводы

Обобщение результатов многочисленных измерений  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  в почвенных пробах, отобранных в 30-километровой зоне ЧАЭС, а также результатов специальных исследований, проведенных в УкрНИИСХР, и их статистический анализ позволяют сделать следующие выводы:

отобранные в 30-километровой зоне пробы почвы, вследствие присутствия в них “горячих” частиц, имеют существенную объемную неоднородность загрязнения, не устраняемую при гомогенизации;

результат измерения радионуклидов в пробе почвы, содержащей “горячие” частицы, является случайной величиной и удовлетворительно описывается логнормальным законом распределений вероятностей;

на основе статистического анализа многочисленных измерений получены оценки дисперсии логарифма возможных значений удельной активности единичной пробы при  $\gamma$ -спектрометрическом измерении  $^{137}\text{Cs}$  в двух геометриях и при радиохимическом измерении  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  в образцах объемом по  $100\text{ см}^3$ ;

предложен метод расчета минимально необходимого числа измеряемых образцов, необходимых для определения с заданной относительной погрешностью медианы содержания  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , отношения  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  в пробах почвы, содержащих “горячие” частицы.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kashparov V.A., Ivanov Yu.A., Zvarich S.I. et al.* Formation of Hot Particles During the Chernobyl Nuclear Power Plant Accident. // *Nuclear Technology*. – 1996. – Vol. 114, No. 1. – P. 246 - 253.
2. *Каушаров В.О.* Формування і динаміка радіоактивного забруднення навколишнього середовища під час аварії на Чорнобильській АЕС та в післяаварійний період // *Чорнобиль. Зона відчуження: Зб. наук. праць*. – Київ: Наук. думка, 2001. – С. 11 - 46.
3. *Методические указания по определению содержания  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в почвах и растениях*. – М., 1985. – 64 с.
4. *Bunzl K.* Probability for Detecting Hot Particles in Environmental Samples by Sample Splitting // *Analyst*. – 1997. – Vol. 122. – P. 653 - 656.
5. *Bunzl K.* Detection of radioactive hot particles in environmental samples by repeated mixing // *Appl. Radiat. Isot.* – 1998. – Vol. 49. – P. 1625.
6. *Kashparov V.A., Yoshchenko V.I., Levchuk S.E. et al.* Application of the method of repeated mixing to non-uniformly contaminated bulky samples // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2000. – Vol. 246, No. 1. – P. 165 - 172.
7. *Хомутинин Ю.В., Каушаров В.А., Жебровская Е.И.* Оптимизация отбора и измерений проб при радиоэкологическом мониторинге: Монография. – Киев: ВІПОЛ, 2001, - 160 с.
8. *Kashparov V.A., Lundin S.M., Khomutinin Yu.V. et al.* Soil contamination with  $^{90}\text{Sr}$  in the near zone of the Chernobyl accident // *Journal of Environment Radioactivity*. – 2001. – Vol. 56, No. 3. – P. 285 - 298.
9. *Каушаров В.А., Зварич С.И., Процак В.П., Журба М.А.* Кинетика растворения чернобыльских топливных частиц II. Растворение топливных частиц в естественных условиях в почве // *Радиохимия*. – 2000. – Т. 42, № 6. – С. 542 - 549.
10. *Смирнов Н.В., Дунин-Барковский И.В.* Курс теории вероятностей и математической статистики для технических приложений. - М.: Наука, 1965. – 511 с.

## ПОХИБКА ВИМІРЮВАННЯ АКТИВНОСТІ НЕОДНОРІДНО ЗАБРУДНЕНИХ ПРОБ ҐРУНТУ

Ю. В. Хомутинін

Розглянуто питання достовірності визначення вмісту  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  та відношення  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  у пробах ґрунту при наявності “горячих” частинок. Показано, що проби ґрунту мають об’ємну неоднорідність забруднення, яка не може бути усунута при гомогенізації. Розподіл можливих значень питомої активності проби підпорядковується логнормальному закону. Запропоновано метод розрахунку мінімально необхідної кількості проб ґрунту для оцінки медіани значення, що вимірюється із заданою похибкою.

UNCERTAINTY OF ACTIVITY MEASUREMENT OF HETEROGENEOUSLY  
CONTAMINATED SOIL SAMPLES

Yu. V. Khomutinin

The problems of reliable determination of activity of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  and activity ratio  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  in the soil samples containing the hot particles are considered. It is shown that the soil samples have volumetric heterogeneity of contamination, which can not be eliminated by their homogenization. Distribution of the possible values of the sample specific activity is described by the lognormal regularity. It is proposed the method for calculation of a minimal necessary number of the soil samples for the estimation of median of the measured value at the fixed relative uncertainty.

Поступила в редакцию 04.04.03,  
после доработки – 11.07.03.