УДК 621.039

ПРО ВПЛИВ ГЕТЕРОГЕННОСТІ МАТРИЦІ НА ПОХИБКУ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРІЇ ПРИ КОНТРОЛІ АКТИВНОСТІ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ

В. С. Прокопенко[1], Л. С. Салтиков[1], В. І. Слісенко[1], С. В. Шевченко[1], Б. В. Кожушко[2]

[1]*Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ*
[2]*Інститут фізики НАН України, Київ*

Розглянуто вплив гетерогенності матриці радіоактивних відходів (РАВ) на величину щільності потоку вихідних гамма-квантів при їх проходженні в матриці. Показано, що гетерогенність веде до позитивного зсуву середнього значення щільності порівняно з гомогенними РАВ, якщо значення коефіцієнта поглинання гамма-квантів у таких РАВ дорівнює середньому значенню коефіцієнта гетерогенної матриці. При визначенні активності РАВ методиками, що були відкалібровані з використанням гомогенних еталонів, це веде до завищеного значення активності відходів.

Ключові слова: радіоактивні відходи, контроль активності, гамма-спектрометрія.

Вступ

У значній частині методик неруйнівного аналізу активності радіонуклідів у РАВ, які є в “bulk” формі або розміщені в контейнері, використовується спектрометрія вихідних гамма-квантів радіонуклідів, що реєструються детекторами, розміщеними зовні упаковки РАВ [1, 2]. За умов, якщо матриця РАВ є гомогенною, тоді не виникає проблем як при калібруванні методики, так і при інтерпретації результатів вимірювань (визначення активності радіонуклідів) при роботі монітора за призначенням.

Однак якщо матриця є гетерогенною, тобто існує неоднорідність розподілу коефіцієнта поглинання (КП) квантів в об’ємі упаковки, це суттєво ускладнює аналіз. У той же час у дійсності основна кількість (твердих) РАВ є саме такою, але застосування в принципі можливих додаткових операцій з гомогенізації РАВ у більшості випадків веде до неприпустимого зростання вартості аналізу. Проблема гетерогенності при контролі РАВ до цього часу вирішується, як правило, двома способами: 1) з використанням при вимірюваннях активності даних про локальні розподіли КП у РАВ, що паралельно визначаються із застосуванням томографії упаковки [3 - 6]; 2) шляхом імітації реальних РАВ в еталонному зразку при калібруванні методики [7, 8]. Обидва підходи мають свої недоліки. Томографія практично можлива тільки для відносно малих упаковок (до ~200 л) та відносно малих значень щільності матриці РАВ (до ~1 г/см^3), у той час як імітація реальних РАВ вочевидь може бути застосована лише в окремих випадках. Тому на практиці єдиний можливий універсальний спосіб калібрування – це калібрування з використанням гомогенних зразків.

Відповідно виникає проблема більш загальної оцінки впливу гетерогенності РАВ на результати вимірювань активності за умов калібрування методики на гомогенному імітаторі.

Урахування гетерогенності матриці

Для деякої точки з активністю A_{tot} щільність потоку квантів у місці розташування детектора дорівнює

$$\varphi_H = \frac{A_{tot}}{4\pi r^2} e^{-\lambda_w t} e^{-\lambda_0 (r-t)} \equiv \varphi_0 e^{-\lambda_w t} e^{-\lambda_0 (r-t)}, \qquad (1)$$

де t – пробіг кванта в матеріалі стінки контейнера; r – відстань до детектора; λ_w, λ_0, – лінійні коефіцієнти поглинання (ЛКП) гамма-квантів у матеріалі стінки та матриці контейнера.

Якщо активність A_{tot} рівномірно розподілена в об’ємі контейнера з питомою активністю A, то диференціал щільності потоку, що попадає на детектор, дорівнює

$$d\varphi_H = \frac{A\rho dV}{4\pi r^2} e^{-\lambda_w t} e^{-\lambda_0 (r-t)}, \qquad (2)$$

де ρ – щільність матриці РАВ.

Якщо активність A_{to} знаходиться в деякій точці гетерогенної матриці, то щільність потоку (ЩП) в детекторі є

$$\varphi = \frac{A_{tot}}{4\pi r^2} e^{-\lambda_w t} e^{-\frac{r-t}{k}\sum_{i=1}^{k}\lambda_i}, \qquad (3)$$

де $(r-t)/k$ – характерний розмір фрагментів зразка; k – число фрагментів на шляху гамма-кванта; λ_i – значення лінійного коефіцієнта поглинання в i-му фрагменті. Відзначимо, що такий спосіб представлення ЩП є можливим, оскільки нерівномірність розподілу ЛКП і нерівномірність розподілу розмірів фрагментів можна звести до одного розподілу деякого еквівалентного ЛКП.

Модельні розподіли ЛКП

Серед можливих розподілів ЛКП є тільки один, який може бути "базовим", – це рівномірний розподіл. Будь-який інший є унікальний; число розподілів практично безкінечне. Тому в даній роботі було вибрано декілька типових розподілів, для яких, з одного боку, можна було б проводити оцінки принаймні середнього значення та похибки в аналітичному вигляді, з іншого – ці розподіли мають суттєво відрізнятися й у той же час мають бути реалістичними. Наприклад, ЛКП не може бути розподілений за нормальним законом, оскільки область визначення цього розподілу включає негативні значення, а ЛКП негативним бути не може.

Таким чином, у даній роботі було вибрано три основні розподіли ЛКП по фрагментах матриці – експоненціальний (далі має індекс "E"), гамма-розподіл (індекс "G") та рівномірний розподіл (індекс "U"). Крім того, необхідно враховувати можливість варіантів, коли в розподілі РАВ є деяка стала складова, тобто коли ЛКП в об'ємі не може бути меншим, ніж деяке значення *a*.

При цих умовах отримуємо такі вирази для щільності вказаних розподілів $f(\lambda)$:

для експоненціального розподілу

$$f_E(\lambda\,|\,\lambda_0,a)=\frac{1}{\lambda_0-a}e^{-\frac{\lambda-a}{\lambda_0-a}}, \tag{4}$$

значення ЛКП $\lambda \ge a$; середнє значення ЛКП $<\lambda_E>=\lambda_0$; дисперсія ЛКП $\sigma^2{}_E=(\lambda_0-a)^2$;

для гамма-розподілу

$$f_G(\lambda\,|\,\lambda_0,a)=\frac{\lambda-a}{[(\lambda_0-a)/2]^2}e^{-\frac{\lambda-a}{(\lambda_0-a)/2}}, \tag{5}$$

$\lambda \ge a$; $<\lambda_G>=\lambda_0$; $\sigma^2{}_G=(\lambda_0-a)^2/2$;

для рівномірного розподілу

$$f_U(\lambda)=\frac{1}{2(\lambda_0-a)}, \tag{6}$$

$\lambda \ge a$; $<\lambda_U>=\lambda_0$; $\sigma^2{}_U=\dfrac{(\lambda_0-a)^2}{3}$.

Розподіли для декількох фрагментів

Якщо гамма-квант на шляху до детектора перетинає декілька, а саме *k* фрагментів, то з формули (3) випливає, що в даному випадку необхідно розглядати розподіли для сум ЛКП. Для вибраних розподілів отримуємо:

для експоненціального розподілу

$$S_{kE}\equiv\sum_{i=1}^{k}\frac{\lambda_i-a}{\lambda_0-a}, \tag{7}$$

$$f_E(S_{kE}\,|,k)=\frac{S^{k-1}e^{-S}}{(k-1)!} \tag{7а}$$

(у правій частині формули тут і далі для спрощення при *S* не показано індекс "$_{kE}$"),

$$\frac{r}{k}\sum_{i=1}^{k}\lambda_i=\frac{r}{k}[(\lambda_0-a)S_{kE}+ka]; \tag{7б}$$

для гамма-розподілу

$$S_{kG}\equiv\sum_{i=1}^{k}\frac{2(\lambda_i-a)}{\lambda_0-a}, \tag{8}$$

$$f_G(S_k\,|,k)=\frac{S^{2k-1}e^{-S}}{(2k-1)!}, \tag{8а}$$

$$\frac{r}{k}\sum_{i=1}^{k}\lambda_i=\frac{r}{k}(\frac{\lambda_0-a}{2}S_{kG}+ka). \tag{8б}$$

Для рівномірного розподілу явного виразу для щільності розподілу отримати практично неможливо вже при $k \ge 3$, однак для нього можна, тим не менш, отримати вирази для середнього значення і дисперсії ЩП квантів при проходженні квантом декількох фрагментів.

Середні значення, дисперсії та зсуви середніх значень ЩП гамма-квантів

Оскільки сумарний ЛКП при проходженні квантом відстані "диференціальний об'єм - детектор" є величина випадкова, то очевидно, що випадковою є і величина ЩП у детекторі, і, відповідно, результат вимірювання активності. Для вибраних розподілів можна провести оцінку основних параметрів вимірювань – дисперсії/статистичної похибки і зсуву середнього значення ЩП.

Уведемо додаткове позначення $\alpha_E=1+\dfrac{r(\lambda_0-a)}{k}$. Крім того, у цьому розділі для простоти розглянемо випадок при нульовій товщині стінки контейнера $t = 0$. Тоді для середнього значення ЩП та дисперсії отримуємо:

для експоненціального розподілу, середнє значення ЩП

$$< \varphi_{kE} >= \varphi_0 e^{-ar} \int_0^\infty \frac{S^{k-1}}{(k-1)!} e^{-\alpha_E S} dS =$$

$$= \varphi_0 e^{-ar} [\frac{k}{k+(\lambda_0 - a)r}]^k . \quad (9)$$

Оскільки середнє значення квадрата ЩП дорівнює (для $\alpha_{E2} = 1 + \frac{2r(\lambda_0 - a)}{k}$)

$$< \varphi^2{}_{kE} >= \varphi_0{}^2 e^{-2ar} \int_0^\infty \frac{S^{k-1}}{(k-1)!} e^{-\alpha_{E2} S} dS =$$

$$= \varphi_0{}^2 e^{-2ar} [\frac{k}{k+2(\lambda_0 - a)r}]^k ,$$

а дисперсія, як це добре відомо, дорівнює $\sigma^2{}_{kE} =< \varphi^2{}_{kE} > - < \varphi_{kE} >^2$, то дисперсія ЩП при експоненціальному розподілі ЛКП і після проходження квантами k фрагментів матриці дорівнює

$$\sigma^2{}_{kE} = \varphi_0{}^2 e^{-2ar} \{[\frac{k}{k+2(\lambda_0 - a)r}]^k -$$

$$-[\frac{k}{k+(\lambda_0 - a)r}]^{2k} \} , \quad (9а)$$

відповідний зсув оцінки середнього значення

$$D_{kE} = \varphi_0 e^{-ar} \{[\frac{k}{k+(\lambda_0 - a)r}]^k - e^{-(\lambda_0 - a)r} \} . \quad (9б)$$

Для гамма-розподілу аналогічно отримуємо: середнє значення ЩП

$$< \varphi_{kG} >= \varphi_0 e^{-ar} \int_0^\infty \frac{S^{2k-1}}{(2k-1)!} e^{-\alpha S} dS =$$

$$= \varphi_0 e^{-ar} [\frac{2k}{2k+(\lambda_0 - a)r}]^{2k} ; \quad (10)$$

дисперсію

$$\sigma^2{}_{kG} = \varphi_0{}^2 e^{-2ar} \{[\frac{k}{k+(\lambda_0 - a)r}]^{2k} -$$

$$-[\frac{2k}{2k+(\lambda_0 - a)r}]^{4k} \} ; \quad (10а)$$

зсув оцінки середнього значення

$$D_{kG} = \varphi_0 e^{-ar} \{[\frac{2k}{2k+(\lambda_0 - a)r}]^{2k} - e^{-(\lambda_0 - a)r} \} . \quad (10б)$$

Формули (9) – (10) отримано шляхом прямого інтегрування відповідних розподілів. Як уже було вказано раніше, для рівномірного розподілу такий спосіб практично не є реальним при числі фрагментів більш ніж 3. Однак експоненціальний вид функції ЩП дозволяє отримати відповідні оцінки основних параметрів результатів вимірювань активності й у даному випадку:

середнє значення ЩП

$$< \varphi_{kU} >= \varphi_0 e^{-ar} [\frac{k}{2r(\lambda_0 - a)} (1 - e^{-\frac{2r(\lambda_0 - a)}{k}})]^k ; \quad (11)$$

дисперсія

$$\sigma^2{}_{kU} = \varphi_0{}^2 e^{-2ar} \{[\frac{k}{4(\lambda_0 - a)r}]^k (1 - e^{-\frac{4r(\lambda_0) - a}{k}})^k -$$

$$-[\frac{k}{2(\lambda_0 - a)r}]^{2k} (1 - e^{-\frac{2r(\lambda_0 - a)}{k}})^{2k} \} ; \quad (11а)$$

зсув оцінки середнього значення

$$D_{kU} = \varphi_0 \; e^{-ar} \{[\frac{k}{2(\lambda_0 - a)r}]^k (1 - e^{-\frac{2r(\lambda_0) - a}{k}})^k -$$

$$-e^{-(\lambda_0 - a)r} \} . \quad (11б)$$

Загальна властивість зсуву середнього значення ЩП у гетерогенній матриці

З формул для зсуву оцінок середнього значення ЩП для розглянутих розподілів (9б), (10б), (11б) випливає, що значення зсуву завжди, тобто незалежно від типу даного розподілу, є позитивним. Тому виникає питання – яким буде зсув для інших розподілів? Щоб відповісти на це питання, розглянемо варіант будь-якого розподілу ЛКП [9], а саме:

$$f(\lambda \mid p_1, p_2, p_3 ...); \lambda \in [a, b] , \quad (12)$$

де a, b, p_i – будь-які параметри.
За визначенням:

$$\int_a^b f(\lambda) d\lambda = 1 , \quad (12а)$$

$$\int_a^b \lambda f(\lambda) d\lambda = \lambda_0 . \quad (12б)$$

Середнє значення щільності потоку після якогось фрагмента матриці за умов k фрагментів на відстані r буде

$$< \varphi\ (\lambda\,|\,k,r) >= \varphi_0 \int_a^b e^{-\frac{\lambda r}{k}} f(\lambda) d\lambda\,, \qquad (13)$$

де φ_0 – щільність потоку на вході фрагмента.

Для подальшого розгляду рівняння (13) можна спростити без утрати загальності

$$< \varphi(\lambda\,|\,k,r) >= \varphi_0 \int_a^b e^{-\frac{\lambda r}{k}} f(\lambda) d\lambda = [u \equiv \frac{\lambda r}{k}] =$$

$$= \varphi_0 \int_{ar/k}^{br/k} e^{-u} f(ku/r) \frac{k}{r} du = \varphi_0 \int_{u_1}^{u_2} e^{-u} f_1(u) du\,,$$

при цьому $\int_{u_1}^{u_2} f_1(u) du = 1$; $\int_{u_1}^{u_2} u f_1(u) du = \lambda_0 \frac{k}{r} \equiv u_0$;

щільність потоку для гомогенної матриці

$$\varphi_H = \varphi_0 e^{-u_0}\,. \qquad (14)$$

Зазначимо, що величина φ_H не є така, як у формулі (1), у даному випадку це є щільність потоку деякого паралельного пучка.

Тоді відношення J величин середнього значення ЩП для гетерогенної і гомогенної матриць буде дорівнювати

$$J = \frac{< \varphi(\lambda\,|\,k,r) >}{\varphi_H} = \int_L e^{-(u-u_0)} f_1(u) du \equiv \int_L e^{-Z(u)} f_1(u) du, \qquad (15)$$

де $\int_L Z(u) f_1(u) du = 0$.

Після n тотожних перетворень рівняння (15)

$$J = \int_L e^{-Z} f_1(u) du = \int_L (e^{-Z} + 1) f_1(u) du - 1 =$$

$$= \int_L (e^{-Z/2} - 1)^2 f_1(u) du + 2 \int_L e^{-Z/2} f_1(u) du - 1\,,$$

…

отримуємо для J

$$J = \sum_{k=1}^{n} 2^{k-1} \int_L (e^{-\frac{Z}{2^k}} - 1)^2 f_1(u) du +$$

$$+ 2^n \int_L e^{-\frac{Z}{2^n}} f_1(u) du - 2^n + 1 \equiv J_1 + J_2 - 2^n + 1\,. \qquad (16)$$

При $n \to \infty$

$$J_2 = 2^n \int_L e^{-\frac{Z}{2^n}} f_1(u) du = 2^n \int_L \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-1)^k}{k!} (\frac{Z}{2^n})^k f_1(u) du =$$

$$= 2^n + \frac{< Z^2 >}{2^{n+1}} + ...\,, \qquad (17)$$

тобто $J_2 > 2^n$.

Беручи до уваги, що інтеграли в першій сумі рівняння (16) завжди є позитивними, $J_1 > 0$, отримуємо $J > 1$, тобто якщо матриця РАВ є гетерогенною, то при будь-якому розподілі лінійного коефіцієнта поглинання гамма-квантів середня ЩП гамма-квантів після їх проходження деякої відстані буде завжди більше ЩП у випадку, якщо гамма-кванти проходять таку відстань в однорідній матриці з ЛКП, який дорівнює середньому ЛКП для гетерогенної матриці. Звідси випливає важливий висновок для проблеми контролю активності РАВ: якщо деяка система контролю РАВ у контейнерах була відкалібрована з використанням зразка з гомогенною (і однорідною за своїми характеристиками) матрицею, то середнє значення результатів вимірювань активності по ансамблю контейнерів з гетерогенними РАВ з великою ймовірністю буде більше реального значення активності.

Висновки

При наявності гетерогенності матриці при будь-якому розподілі лінійного коефіцієнта поглинання середній результат вимірювань активності із застосуванням методики, що була відкалібрована на гомогенному зразку, буде зміщений у порівнянні з реальним значенням активності в позитивний бік, тобто застосування прямої гамма-спектрометрії веде до переоцінки (консервативної оцінки) активності в упаковці. При цьому цей зсув збільшується як при збільшенні дисперсії розподілу коефіцієнта поглинання гамма-квантів (величина $< Z^2 >$ у формулі (17)), так і при збільшенні розмірів фрагментів гетерогенності. За таких умов очевидно збільшується й випадкова частина повної похибки вимірювань, однак факт, що систематична похибка завжди позитивна, веде до деякої компенсації негативного впливу гетерогенності на результати контролю активності відходів. При зменшенні розмірів фрагментів зсув зменшується, але при цьому зменшується також і похибка вимірювань взагалі, оскільки параметри упаковки, що контролюється, стають подібними до параметрів гомогенного зразка, який було застосовано при калібруванні методики.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *McClelland, P.* Radiometric Non-Destructive Assay: Measurement Good Practice Guide No. 34. - UKAEA, Dounreay, Vic Lewis, National Physical Laboratory. (http://www.npl.co.uk/publications/good_practice/ gpg34_radiometric_non_destructive_assay.pdf).
2. *Requirements* and methods for low and intermediate level waste package acceptability // IAEA-TECDOC-864/IAEA. - Vienna, 1996 (www-pub.iaea.org/ MTCD/publications/PDF/te_864_prn.pdf).
3. *Venkataraman, R., Villani, M., Croft, S. et al*. An integrated Tomographic Gamma Scanning system for non-destructive assay of radioactive waste // Nucl. Instr. Res. A. - 2007. - Vol. 579 (1). - P. 375 - 379.
4. *Tran Quoc Dung.* Calculation of the systematic error and correction factors in gamma waste assay system // Annals of Nuclear Energy. - 1997. - Vol. 24(1). - P. 33 - 47.
5. *Tran Ha Anh, Nguyen Duc Thanh, Tran Quoc Dung*. Evaluation of performance of a new gamma technique for assay of radioactive waste // Annals of Nuclear Energy. - 2005. - Vol. 32(13). - P. 1516 - 1523.
6. *Robert-Coutant, C., Moulin, V., Sauze, R. et al.* Estimation of the matrix attenuation in heterogeneous radioactive waste drums using dual-energy computed tomography // Nucl. Instr. Res. A. - 2007. - Vol. 422 (1 - 3). - P. 949 - 956.
7. *Keyser, R., Twomey, T., Hagenauer R.* Performance of a Multi-Spectrum Assay System for Large Containers / ORTEC, 801. - South Illinois Avenue, Oak Ridge, TN 37831. (www.ortec-online.com).
8. Гамма-спектрометрия с ISOCS, системой измерения объектов на местности: Публикации. - (www.canberra.ru/html/products/ software).
9. *Шевченко С.В.* Про похибку гамма-методу при контролі активності РАВ в контейнерах // Матеріали Міжнар. наук.-техн. конф. рятівників “Проблеми поводження з радіоактивними відходами в Україні”, Київ, 3 - 5 жовтня 2007 р. - С. 52 - 55.

О ВЛИЯНИИ ГЕТЕРОГЕННОСТИ МАТРИЦЫ НА ПОГРЕШНОСТЬ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИИ ПРИ КОНТРОЛЕ АКТИВНОСТИ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

В. С. Прокопенко, Л. С. Салтыков, В. И. Слисенко, С. В. Шевченко, Б. В. Кожушко

Рассмотрено влияние гетерогенности матрицы радиоактивных отходов (РАО) на величину плотности потока исходных гамма-квантов при их транспорте в матрице. Показано, что гетерогенность РАО приводит к положительному смещению среднего значения плотности в сравнении с гомогенными РАО, если значения коэффициента поглощения гамма-квантов в таких РАО равно среднему значению коэффициента в гетерогенной матрице. При определении активности РАО методиками, калибровка которых была проведена с использованием гомогенных эталонов, это приводит к положительному смещению оценки активности отходов.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, контроль активности, гамма-спектрометрия.

ON THE INFLUENCE OF MATRIX’S HETEROGENEITY ON UNCERTAINTY OF GAMMA-SPECTROMETRY AT ACTIVITY ASSAY OF RADIOACTIVE WASTE

V. S. Prokopenko, L. S. Saltykov, V. I. Slisenko, S. V. Shevchenko, B. V. Kozhushko

The influence of the waste matrix heterogeneity on the flux density value of initial gamma quanta at the transport of quanta in the matrix was considered. It is shown that the waste heterogeneity leads to the positive shift of the average flux density value comparing with corresponding value for homogeneous waste if average value of the attenuation factor in heterogeneous matrix is equal to the attenuation factor of homogeneous matrix. Due to this the activity assay of heterogeneous waste by a technique which was calibrated by using a homogeneous standard (surrogate container) the measurement results will be positively shifted, or, in other words, conservative estimation of the waste activity will be obtained.

Keywords: radioactive waste, activity assay, gamma-spectrometry.

Надійшла до редакції 11.06.09,
після доопрацювання - 18.11.09.