

ЕКОЛОГІЧНИЙ МОНІТОРИНГ, ПРОГНОЗУВАННЯ ТА ОЦІНКА СТАНУ ДОВКІЛЛЯ

УДК 556.5.08:543.52

DOI: 10.31471/2415-3184-2020-2(22)-58-71

В. Г. Сінченко*ДП "Науковий центр превентивної
токсикології, харчової та хімічної
безпеки імені академіка Л. І. Медведя
МОЗ України*

ПРО СПЕКТРОМЕТРІЮ РАДІОНУКЛІДІВ Cs-137 І Sr-90 У ПОВЕРХНЕВИХ ПРІСНИХ ВОДАХ ТА ВІДПОВІДНІСТЬ ЇХ АКТИВНОСТІ ДОПУСТИМИМ РІВНЯМ

Розглянуто задачу співставлення показників радіаційної дії забрудненої радіонуклідами (РН) ^{137}Cs і ^{90}Sr поверхневої води з допустимими рівнями (ДР) їх активності. Запропоновано новий підхід до розрахунку показника відповідності (ПВ), який оцінює вміст у воді РН ^{137}Cs або ^{90}Sr . Основою підходу є припущення про залежність ПВ від відносної величини параметру відхилення. Параметр відхилення визначена в долях мінімально вимірюваної спектрометром питомої активності РН (МВПА). Досліджено вплив на ПВ коефіцієнта запасу, який компенсує неточності розрахунку значення МВПА. Запропоновано алгоритм встановлення величини коефіцієнта запасу як функції параметру відхилення. Алгоритм базується на даних серії вимірювань одного лічильного зразка.

Представлено рівняння для розрахунку коефіцієнта запасу. У ньому використана модель опису розподілу відносної похибки вимірювання нормованою функцією Гауса. Придатність останньої обґрунтована результатами вимірювання активності РН ^{137}Cs . Застосовано представлення аргументу функції Гауса двома параметрами. Одним з них є параметр відхилення, інший регулює ширину піку розподілу. Для встановлення обох параметрів функції Гауса використано метод мінімізації квадратів відхилень. За отриманих значень експонента оптимально описує результат експерименту. Встановлено універсальне рівняння для розрахунку ПВ. При цьому застосовано ряд положень теорії оперативної характеристики випробування. Рівняння поєднує два окремих співвідношення, за якими ПВ щодо РН ^{137}Cs або ^{90}Sr , зазвичай, може розраховуватись в задачі аналізу радіаційної якості поверхневої води.

Представлено результати розрахунків ПВ, коефіцієнта запасу та інших параметрів щодо їх визначення. Використано дані вимірювання активності РН ^{137}Cs у двох модельних зразках-аналогах можливих лічильних зразків поверхневої води. Підтверджено ефективність алгоритму розрахунку для інтервалів відхилень поблизу нижньої межі вимірювання активності РН. Результати відповідають фізичним передумовам, які закладені у модель обробки спектрометричних даних. Запропоновані співвідношення гарантовано забезпечують визначення класу чистоти та категорії забрудненості води в процесі трактування отриманих в результаті випробування даних.

Ключові слова: категорія забрудненості; критерії екологічного стану; показники радіаційної дії; спектрометрія радіонуклідів ^{137}Cs і ^{90}Sr ; поверхневі прісні води.

Окреслення проблеми, її актуальність. Антропогенне навантаження на території та їх гідроекосистеми обґрунтовує необхідність вивчення наявного забруднення поверхневих вод та управління їх якістю. Дослідження цього напрямку в попередні роки представлені рядом авторів, як у поточних виданнях, так і монографіях, наприклад [3, 13]. Увагу привертають результати робіт, в яких наведено дані щодо зміни якості під впливом забруднювачів, вміст яких у воді є незначним. До таких робіт можна, зокрема, віднести монографії [5, 11]. В них описуються механізми впливу на склад води забруднювачів різного напрямку дії, супутніх факторів процесів

та гідрологічних чинників. Актуальність зазначеного напрямку досліджень підкреслена і у Водній Рамковій Директиві ЄС 2000/60/ЄС [1].

Незначні рівні забруднення територій радіонуклідами (РН) різного походження, в тому числі ^{137}Cs і ^{90}Sr , через механізми фільтрації і накопичення на зависях, а також у донних відкладеннях, призводять до їх появи у поверхневих водах [6], гідробіонтах та іхтіофауні водних об'єктів [16, 17]. Наявні у воді антропогенні РН додатково підсилюють загальний фон γ - та β -активності поверхневої води. Зазначені фактори обумовлюють причини, згідно яких питома активність вмісту ^{137}Cs і ^{90}Sr є показником, який у основних класифікаціях екологічної якості води визначено в складі розділу “Специфічні показники” [8]. Активність РН ^{137}Cs і ^{90}Sr є складовою частиною індексу води – комплексного показника за яким інтегрально оцінюється її якість у відповідних категоріях забрудненості. Таким чином, дослідження щодо встановлення вмісту ^{137}Cs і ^{90}Sr , співставлення їх результатів із значеннями допустимих рівнів (ДР) зазначених РН по категоріям забрудненості, відносяться до значимої для практики загальної задачі – оцінювання якості поверхневої води та екологічного стану водного об'єкту.

Попередні дослідження, їх аналіз. Визначення ^{137}Cs і ^{90}Sr у поверхневій воді з метою оцінювання її якості та радіаційної безпечності для оточуючого середовища традиційно базується на методах радіохімічного аналізу. Відомі ряд методик виконання вимірювань (МВВ) такого аналізу, узагальнюючою з яких є [9]. Зазначимо, що ця МВВ передбачає використання значного об'єму води, до 50 дм³ на один аналіз. Вміст РН ^{137}Cs і ^{90}Sr у поверхневих прісних водах суші може визначатись і з використанням спектрометричних методів. Алгоритм визначення, вибір технологічних параметрів такого дослідження та один з можливих критеріїв оцінювання представлено у [14].

Низькі значення ДР вмісту РН ^{137}Cs і ^{90}Sr , а одночасно і вплив останніх на стан у гідроекосистемі водного об'єкту за таких ДР, обумовлюють необхідність при використанні результатів вимірювання брати до уваги параметри їх точності. Особливо важливим це є при оцінюванні вод, яка відносяться згідно класифікацій якості [7, 8] до класу чистої або особливо чистої води. У такому випадку, як правило, загальна відносна похибка визначення вмісту РН є максимальною. Зокрема для радіохімічного методу її величина на практиці може досягати 30, а часом і більше відсотків. Дані моніторингових досліджень, які, зазвичай, приводяться в наукових виданнях, наприклад [4, 10], як правило оминають питання точності вимірювання. За таких умов можна використати лише спрощений підхід до співставлення виміряної активності РН ^{137}Cs і ^{90}Sr з їх ДР. Хоча використання в якості результату вимірювання лише його середнього значення не може вважатись метрологічно обґрунтованим саме така основа закладена у згаданих вище класифікаціях. В них виміряне середнє значення активності ставиться у відповідність класу чистоти та категорії забрудненості. При цьому обчислюється перевищення значення над мінімальним в категорії та відношення перевищення до діапазону зміни активності в межах категорії.

Невирішені частини проблеми. Низька точність, особливо в діапазоні поблизу нижньої межі вимірювання, як для радіохімічного так і спектрометричного методів аналізу, не забезпечує трактовку отриманого середнього значення активності як однозначно виміряної величини. Використовувані алгоритми та розрахункові співвідношення не сприяють коректному визначенню категорії забрудненості. Наявна у класифікаціях екологічного стану поверхневих вод величина розривів по діапазону змін питомої активності (у відносних одиницях, зокрема для РН ^{137}Cs , орієнтовно 0,02–0,07) не перекриває вплив на результат прийняття рішення похибок вимірювання. За зазначених обставин задачу встановлення категорії забрудненості води доцільно вирішувати з позиції підходів теорії метрології [15]. Застосування засобів сучасного спектрометричного контролю до визначення ^{137}Cs і ^{90}Sr у поверхневих водах різного рівня забрудненості забезпечує процес відносно простого отримання усіх складових результату вимірювання. На цьому ґрунті стає можливим при співставленні результату з величиною ДР активності зазначених РН використати положення теорії випробувань [2]. Вони враховують статистичну природу процесу вимірювання і, як загально прийнято, коректно відображають його результат.

Мета. Робота присвячена застосуванню показників радіаційної дії РН ^{137}Cs та ^{90}Sr як складових етапу інтегрального оцінювання якості поверхневої води. Мета роботи полягає у знаходженні моделі та встановленні можливостей співставлення результатів спектрометричного вимірювання та ДР активності РН. Мета передбачає метрологічну коректність у використанні даних вимірювання. Робота зорієнтована на вирішення задачі у випадку вод з низьким рівнем

вмісту РН ^{137}Cs і ^{90}Sr . За екологічною класифікацією діапазон значень ДР показників таких вод відповідає верхній межі початкових категорій забрудненості.

Завдання. Заявлена мета передбачає встановлення аналітичного співвідношення критерію співставлення даних вимірювання та ДР активності. Воно повинно містити всі метрологічні компоненти результату. З позиції достовірності оцінки має бути розроблений алгоритм, який забезпечує можливість доєднати до процедури оцінювання метрологічні характеристики спектрометра, методик контролю та оцінювання. Є необхідність і в апробації алгоритму. Передбачається встановити результат співставлення на прикладі даних вимірювання активності ^{137}Cs у модельному зразку та оцінити вплив розрахункових параметрів на процес прийняття рішення щодо належності води відповідній категорії забрудненості.

Основний матеріал, результати, обговорення. Визначення стану екосистем водних об'єктів, класифікація якості їх води передбачає, зокрема, аналіз активності РН ^{137}Cs і ^{90}Sr . Вимірювання активності у випадку чистих та особливо чистих вод через необхідні для аналізу значні об'єми води практично завжди здійснюється в режимі випробування. При порівнянні отриманого значення з величиною ДР активності достовірність відповідності у такому випадку визначається шляхом введення в оціночне співвідношення відповідного коефіцієнту корекції. Останній визначається на основі оперативної характеристики, параметри якої можна визначити за функціональними зв'язками між ними та похибками вимірювання МВВ і параметрами методики виконання контролю (МВК).

Через однотипність співвідношень співставлення вимірної величини активності РН ^{137}Cs , та ^{90}Sr з відповідними ДР їх вмісту по категоріям забрудненості аналіз проведемо на прикладі одного з них. Для цього введемо маркувальний індекс "Xx", який може відповідати належності величини як до ^{137}Cs , так і до ^{90}Sr . Значення ДР тоді позначиться як U_{Xx} . Представимо через $^m A_{Xx}/U_{Xx}$ відношення мінімальної вимірюваної питомої активності (МВПА) $^m A_{Xx}$ до ДР. В наближенні обмеженого нормального закону розподілу вимірних значень активності ^{137}Cs і ^{90}Sr та ряду інших менш суттєвих припущень нерівність належності РН Xx до відповідної категорії забрудненості може бути виписана наступним чином:

$$^{Xx}K_{Kon} \cdot [\bar{A}_{Xx}/U_{Xx} + Z(P_K, P) \cdot \Delta A_{Xx}(P)/U_{Xx}] \leq 1,0. \quad (1)$$

У співвідношенні (1) через $^{Xx}K_{Kon}$ позначено коефіцієнт концентрування зразка води по масі або об'єму, а через $^{Xx}K_{Kon} \cdot \bar{A}_{Xx}$ виміряне середнє значення питомої активності РН Xx. Величина $^{Xx}K_{Kon} \cdot \Delta A_{Xx}(P)$ представляє абсолютну похибку вимірювання середнього значення, яка визначена за довірчої імовірності P. Числове значення лівої частини нерівності (1) тотожно дорівнює показнику відповідності $\Pi_{\text{дон}}$.

З нерівності (1) випливає, що при односторонньому оцінюванні вимірних значень питомої активності з ДР, на рішення щодо встановлення категорії забрудненості води суттєво впливають метрологічні характеристики спектрометра. Частиною спектрометричної МВВ є інформація щодо мінімального та максимального значення похибки вимірювання. Як відомо з метрології, похибка зростає при наближенні до нижньої межі вимірювання. За зростання похибки нерівність (1) може бути виконана лише при зменшенні значення добутку $^{Xx}K_{Kon} \cdot \bar{A}_{Xx}$. Це визначає актуальність розгляду застосування критерію належності води категорії забрудненості саме в діапазоні нижньої межі вимірювання.

При дослідженнях вмісту РН ^{137}Cs та ^{90}Sr у поверхневих водах часто виникає ситуація, коли хоча би для одного, а то і обох РН, наявна активність у воді менша за МВПА. Остання може бути визначена для спектрометра за конкретних умов підготовки лічильного зразка. В позначеннях відносної похибки δ_{Xx} , за довірчої імовірності P, з припущенням щодо рівності коефіцієнту запасу $^m Z$ для обох РН, нерівність критерію належності води до відповідної категорії забрудненості запишеться у вигляді:

$$^{Xx}K_{Kon} \cdot [^m Z \cdot ^m A_{Xx}/U_{Xx} + ^m Z \cdot Z(P_K, P) \cdot (^m A_{Xx}/U_{Xx}) \cdot ^m \delta_{Xx}] \leq 1,0. \quad (2)$$

Значення МВПА $^m A_{Xx}$ встановлюється розрахунковим способом. Воно визначається програмним забезпеченням (ПЗ) спектрометра за даними експерименту про швидкість лічби корисного та фонових сигналів при метрологічній атестації. Використовуються при цьому також інформація про ефективність детектора випромінювання, час вимірювання, про довірчу імовірність та деякі інші параметри спектрометра. Аналогічно $\Delta A_{Xx}(P)$ з нерівності (1), множник $^m Z \cdot K(P) \cdot ^m \delta_{Xx}$ з точністю до постійної визначає відносну похибку вимірювання $^m \delta_{Xx}$, яка застосовується при обчисленні МВПА. В її складі можна передбачити і коефіцієнт, який дає можливість врахування впливу закону розподілу вимірюваних значень активності на похибку при

зміні значення P . Крім того наявний у (2) коефіцієнт корекції $Z(P, P)$ для однократних вимірювань підготовленого з води лічильного зразка можна розрахувати за рівнянням:

$$Z(P, P) = K_A(P_k) \cdot K_t(P) = K_A(P_k) \cdot {}^n t(0,9999) / {}^n t(P). \quad (3)$$

У співвідношенні (3) ${}^n t(0,9999)$ та ${}^n t(P)$ – значення інтегралу імовірності для імовірності $P = 0,9999$ та P відповідно. Коефіцієнт $K_A(P_k)$ визначається з графічної залежності величини достовірності контролю P_k при випробуванні по параметру відхилення вимірюваного значення активності від ДР. Відхилення представляється у нормалізованих координатах як частка точкової або інтервальної оцінки значення похибки, яка приведена до імовірності $P = 1,0$. Для імовірності контролю $P_k = 0,90, 0,95$ та $0,99$ значення коефіцієнту $K_A(P_k)$ становить відповідно $0,46, 0,61$ та $0,82$.

Коефіцієнт $Z(P, P)$, який розраховується за рівнянням (3), є наближеним. Його оціночне зверху значення визначає коефіцієнт переходу від величини $\Delta A_{xx}(0,95)$ до $\Delta A_{xx}(0,9999)$. Рівняння (3) встановлено за умови використання рівняння, за яким ПЗ спектрометрів серії СЕБ 01–XX та СЕГ 01–XX визначає абсолютну похибку вимірювання $\Delta(0,95)$. Аналітичний вираз рівняння представляється формулою:

$$\Delta(P) = K(P) \cdot [F(P) \cdot (\sum \square_j^2 / 3)^{0.5} + {}^n t(P) \cdot S(\tilde{A})]. \quad (4)$$

У формулі (4) доданок $F(P) \cdot (\sum \square_j^2)^{0.5}$ – невиключена систематична похибка (НСП), де сумування проводиться за всіма компонентами θ_j . Через $S(\tilde{A})$ позначено оцінку випадкової складової похибки вимірювання. Емпіричні коефіцієнти $K(P)$ та $F(P)$ є функціями величини імовірності P . Коефіцієнт $K(P)$, крім того, залежить також від числа складових НСП та відношення НСП до оцінки випадкової складової похибки $\gamma(P)$. В рамках одного із способів визначення значення $\gamma(P)$ розраховується за рівнянням [12]:

$$\gamma(P) = F(P) \cdot (\sum \cdot_j^2)^{0.5} / (\sqrt{3} \cdot F(P) \cdot S(A)). \quad (5)$$

Співвідношення (5) справедливо за припущень щодо рівномірності закону розподілу складових НСП та обмеженого нормального для випадкової складової похибки у всьому діапазоні зміни довірчої імовірності P . За відомих значень коефіцієнтів $F(P)$, провівши варіацію складової частини параметра $\gamma(P)$, а саме $F(P) \cdot (\sum \cdot_j^2)^{0.5} / S(A)$ в межах, зазвичай, використовуваних при розрахунках цілих значень від 1 до 8, можна для різних P встановити коефіцієнти $K(P)$, використавши при цьому рівняння [12]:

$$K(P) = (1 + \gamma^2(P))^{0.5} / (1 + \gamma(P)). \quad (6)$$

Рівняння (5) та (6) покладені в основу знаходження мінімального та максимального значення коефіцієнта $K(P)$, відповідно $K_{\min}(P)$ та $K_{\max}(P)$, за дискретності зміни значення $F(P) \cdot (\sum \cdot_j^2)^{0.5} / S(A) = 1,0$. Величину коефіцієнтів $F(0,999)$ та $F(0,9999)$ встановлено шляхом лінійної екстраполяції значень $F(P)$ як функції множника, який пов'язує величину довірчого інтервалу з оцінкою $S(A)$. Використано при цьому значення $F(0,99) = 1,40$ та $F(0,9973) = 1,61$, які встановлені для числа складових НСП 5 і більше [2]. Результати розрахунку для різної величини імовірності P зазначених коефіцієнтів, та інших, які зазвичай використовуються при аналізі точності вимірювання, наведено в табл. 1. Там же представлені розраховані мінімальне $\check{K}_{\min}(P)$ та максимальне $\check{K}_{\max}(P)$ значення коефіцієнта $K(P)$, які встановлені лінійною екстраполяцією в рамках моделі збільшення його величини із зростанням P . Додатково подано також значення коефіцієнтів ${}^n t(p)$ і $K_t(P)$. Останній розраховано як ${}^n t(0,9999) / {}^n t(p)$.

Таблиця 1

Значення коефіцієнтів $F(P)$, $K_{\min}(P)$, $K_{\max}(P)$, $\check{K}_{\min}(P)$, $\check{K}_{\max}(P)$, ${}^n t(p)$ та $K_t(P)$ за різної імовірності P

P	$F(P)$	$K_{\min}(P)$	$K_{\max}(P)$	$\check{K}_{\min}(P)$	$\check{K}_{\max}(P)$	${}^n t(p)$	$K_t(P)$
0,9000	0,95	0,7104	0,8468	0,665	0,790	1,645	2,358
0,9500	1,10	0,7073	0,8302	0,710	0,800	1,960	1,985
0,9800	1,30	0,7083	0,8107	0,770	0,837	2,326	1,673
0,9900	1,40	0,7104	0,8019	0,800	0,850	2,576	1,508
0,9990	1,66	0,7073	0,7868	0,878	0,885	3,291	1,182
0,9999	1,69	0,7072	0,7796	0,887	0,888	3,891	1,000

Усі, окрім $K_i(P)$, коефіцієнти табл. 1 є складовою частиною формули, яка визначає границю довірчого інтервалу. Підставляючи їх послідовно у рівняння (4) отримуємо значення границі для кожної величини імовірності P . Помножимо праву і ліву частину рівняння (4) на коефіцієнт $K_i(p)$ і порівняємо результати з даними, які отримано з (4) при $P = 0,9999$. Слід виділити випадок максимальної розбіжності, яка спостерігатиметься за використання коефіцієнтів $\check{K}_{\min}(P)$ або $\check{K}_{\max}(P)$. Таке порівняння свідчить, що доданки, які стосуються НСП, дещо перевищують аналогічний доданок, який відповідає $P = 0,9999$. Хоча максимальне перевищення відповідає коефіцієнтам $K_i(0,90)$ та $K_i(0,95)$, вплив останніх частково може бути компенсованим за рахунок менших величин коефіцієнтів $\check{K}_{\min}(P)$ або $\check{K}_{\max}(P)$ при таких величинах імовірності P . На додачу складова випадкової похибки для цих же величин P теж є меншою за ту, яка відповідає $P = 0,9999$. Незначне зростання випадкової складової із збільшенням P не суттєво впливає на результат визначення величини $\Delta(0,9999)$ через зменшення впливу коефіцієнта $K_i(P)$. Таким чином дані табл. 1 свідчать, що використання коефіцієнту $K_i(P)$ як множника для знаходження величини $\Delta(0,9999)$ по вимірюваному значенню $\Delta(P)$ дає завищений результат. Воно обумовлює і завищену величину коефіцієнту корекції, значення якого визначається за рівнянням (3). Однак в практичній діяльності отримані зазначеним чином результати часто можуть вважатись прийнятними.

Однією з задач, яку доводиться вирішувати в спектрометрії, є задача співставлення результату вимірювання активності РН із розрахованим значенням $^m A_{Xx}$. Прийнято вважати значення $^m A_{Xx}$ результатом, якщо виміряне середнє значення питомої активності є меншим за $^m A_{Xx}$. Покладений в основу такого співставлення принцип, має суттєвий недолік. Відомо, що в інтервалі поблизу нижньої межі вимірювання величина похибки вимірювання середнього значення активності досягає (60–80), а часом і більше відсотків. В радіометрії об'єктів навколишнього середовища похибка вимірювання обмежується величиною меншою за 40%. Тому використання для розрахунків та оцінок значень, які виміряні в інтервалі активності поблизу межі вимірювання, є проблематичним. Зменшення інтервалу можливе за рахунок уточнення критерію співставлення вимірної активності з величиною $^m A_{Xx}$.

Критерій співставлення зазначених величин уточнимо через визначення частки вимірюваних значень активності, яка для заданої імовірності P може вважатись достатньою щоб стверджувати, що переважаюча більшість виміряних значень буде знаходитись в межах інтервалу, який обмежується величиною $^m A_{Xx}$ та похибкою $0,4 \cdot ^m A_{Xx}$. Для опису процесу встановлення частки використаємо функцію Гауса, яка описує обмежено нормальний закон розподілу густини імовірності вимірюваних значень. Тоді імовірність знаходження вимірюваного значення в інтервалі від $-\infty$ до Z може бути відображена інтегральною функцією з параметром інтегрування $^n t$, загальний вид якої є наступним:

$$\Phi(Z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \cdot \int_{-\infty}^Z \exp\left[-\frac{1}{2} {}^n t^2\right] d {}^n t. \quad (7)$$

Проведений за стандартною в метрології процедурою аналіз значень $\Phi(Z)$, які визначені за рівняння (7), показав, що використання збільшеного вимірюваного середнього значення активності в 1,1; 1,2; 1,3 та 1,4 рази від значення $^m A_{Xx}$, зменшує частку від 1,0 до 0,9292; 0,8365; 0,6879 та 0,5000 відповідно. Якщо достатньою часткою вважати належність до інтервалу, який обмежує число усіх можливих виміряних значень часткою не меншою аніж 0,75, то значення $1,25 \cdot ^m A_{Xx}$ може вважатись оптимальним для застосування в практичній діяльності. Запропоноване уточнення суттєво зменшує протяжність інтервалу, в якому похибка вимірювання може перевищувати 40 відсотків.

Виміряні величини $\bar{A}_{Xx}$, $\Delta A_{Xx}(P)$ та розрахована $^m A_{Xx}$ встановлюються як результат математичної обробки електронного спектру РН ^{137}Cs або ^{90}Sr . Останній накопичується з дискретних значень в інтервалі часу вимірювання t_i . Тому кожна із зазначених величин є функцією часу t_i . За його зростання, розрахована ПЗ спектрометра кожна із величин все більше наближається до відповідного їй усередненого значення. Останнє із подальшим зростанням t_i все менше різниться від попереднього. Задаючи діапазон допустимих відхилень, кожний із спектрометрично встановлюваних величин, можна встановити мінімальний інтервал часу вимірювання t_i . Практика вимірювань з використанням бета-спектрометра СЕБ 01–150 показує наступне. При виборі часу t_i більшого за 2400 с, для переважної більшості лічильних зразків

відхилення вимірних середніх значень у кожній із зазначених величин не відрізняється більш ніж на 30% від її значення, за яке приймається визначене при $t_i = 7200$ с.

Документація на спектрометр та ряд вимог МВВ визначають технічні характеристики точності вимірювання. Наявна їх прив'язка до величини МВПА. Тому розглянемо два розрахункові параметри, які поєднують в собі всі визначені ПЗ спектрометра величини. Їх можна визначити таким чином:

$$\chi_{xx}(t_i) = \bar{A}_{xx}(t_i) / {}^m A_{xx}(t_i), \omega_{xx}(t_i) = \Delta A_{xx}(t_i) / {}^m A_{xx}(t_i). \quad (8)$$

Як показує практика, за використання часу більшого за мінімальний, залежності вимірюваних величин від t_i не несуть значної інформації. Однак залежність відносної похибки вимірювання активності РН $\delta_{xx}(t_i) = \omega_{xx}(t_i) / \chi_{xx}(t_i)$, як функції $\chi_{xx}(t_i)$, є більш інформативною. Вона може бути встановлена за розрахованими ПЗ спектрометра даними, які отримані за різний час вимірювання. На Рисунку представлено такого роду результати. Первинні дані отримані за допомогою бета-спектрометра СЕБ 01–150. Досліджено ряд лічильних зразків, які приготовлені із золи забрудненої РН ^{137}Cs чорниці. Також зазначена маса золи у зразку та інтервал часу від першого до останнього вимірювання.

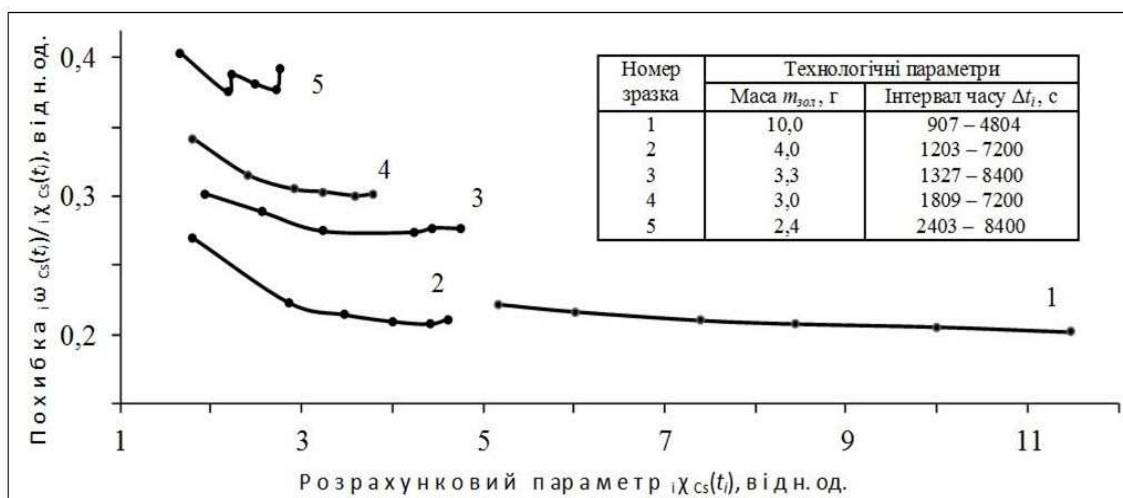


Рис. Залежності відносної похибки $\omega_{Cs}(t_i)/\chi_{Cs}(t_i)$ як функції параметра $\chi_{Cs}(t_i)$ для лічильних зразків різної маси $m_{\text{зол}}$ золи чорниці з РН Cs–137. Розрахункові точки на кривих відповідають часу вимірювання t_i в зазначених інтервалах часу Δt_i

Як видно з рис., для всіх досліджених зразків із зростанням параметру $\chi_{xx}(t_i)$ величина $\delta_{xx}(t_i) = \omega_{Cs}(t_i)/\chi_{Cs}(t_i)$ зменшується. Від початкових значення $\delta_{xx}(t_i)$ переходять на рівень наближений до постійних величин. Наявні незначні флуктуації, особливо у випадку зразків низького рівня активності, для яких $\delta_{xx}(t_i)$ є наближеною до значення 0,40. Представлені графіки вказують на можливість апроксимації даних вимірювання рядом функцій, особливою яких є їх проходження через точку $\chi_{xx}(t_i) = 1,0$ та $\delta_{xx}(t_i) = 0,40$. До них можна віднести, зокрема, наступні функції, які легко адаптувати під зазначену особливість:

$$f(\chi_{xx}(t_i)) = (\chi_{xx}(t_i))^{-q}, f(\chi_{xx}(t_i)) = \exp[-(\chi_{xx}(t_i) - 1)], f(\chi_{xx}(t_i)) = \exp[-0,5 \cdot (\chi_{xx}(t_i) - 1)^2 / \sigma_{xx}^2]. \quad (9)$$

Основне призначення представлених функцій полягає в прогнозуванні результатів вимірювання активності в область більших за виміряні величин $\chi_{xx}(t_i)$. Ще одним їх застосуванням може вважатись встановлення усереднених експериментально визначених із значною розбіжністю величин похибки вимірювання активності. Останнє є суттєвим, особливо для інтервалу від $\chi_{xx}(t_i) = 1,0$ до $\chi_{xx}(t_i) \approx 2,0$. Подібна ситуація часто виникає при аналізі стану водних об'єктів з низьким рівнем вмісту РН у їх воді.

Розглянемо криву 1 на рис. 1, яка відповідає лічильному зразку з високим рівнем активності РН ^{137}Cs . Виходячи з її виду визначимо величину ${}_{\text{об}}\delta_{xx}$ як межу до якої наближається функція відносної похибки ${}_{\text{об}}\delta_{xx}(\chi_{xx}(t_i))$ при збільшенні її аргументу $\chi_{xx}(t_i)$ та констант, в тому числі q . Значення ${}_{\text{об}}\delta_{xx}$ може встановлюватись графічним або аналітичним методами. Найпростіше для його знаходження використати усереднення кінцевих вимірних значень активності. В якості загального рівняння для встановлення величини функції ${}_{\text{об}}\delta_{xx}(\chi_{xx}(t_i))$ при різних значеннях параметра $\chi_{xx}(t_i)$ зручно використовувати наступне:

$$v\delta(\chi_{xx}(t_i)) = \text{ов}\delta_{xx} + (0,40 - \text{ов}\delta_{xx}) \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} \cdot \frac{(\chi_{xx}(t_i) - 1)^2}{\text{ов}\sigma_{xx}^2(t_i)} \right]. \quad (10)$$

У рівнянні (10) застосовано одну з наведених у (8) функцій, а саме нормовану функцію Гауса. Її змінними величинами є параметри $\chi_{xx}(t_i)$ та $\text{ов}\sigma_{xx}(t_i)$. Функціонал останнього полягає в можливості зміни ширини піка. Наслідком рівняння (10) є те, що величина $v\delta(\chi_{xx}(t_i))$ змінюється в межах від 0,40 до нижнього значення $\text{ов}\delta_{xx}$. Крива залежності $v\delta(\chi_{xx}(t_i))$ від $\chi_{xx}(t_i)$ за умова її проходження через точку, положення якої визначається параметрами $\chi_{xx}(t_i)$ та $\omega_{xx}(t_i)$ в момент часу t_i , однозначно визначає і величину $\text{ов}\sigma_{xx}(t_i)$. Аналогічно може бути представлена і функція відносної похибки $h\delta(\chi_{xx}(t_i))$ для випадку лічильного зразка низького рівня активності РН. Загальне рівняння при цьому запишеться як:

$$h\delta(\chi_{xx}(t_i)) = \text{он}\delta_{xx} + (0,40 - \text{он}\delta_{xx}) \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} \cdot \frac{(\chi_{xx}(t_i) - 1)^2}{\text{он}\sigma_{xx}^2(t_i)} \right]. \quad (11)$$

Для спрощення запису в подальшому розгляді залежність від часу вимірювання t_i відобразимо через індекс "i", який введемо у позначення параметрів. В результаті отримаємо: $\chi_{xx}(t_i) = {}_i\chi_{xx}$, $\omega_{xx}(t_i) = {}_i\omega_{xx}$, $\text{он}\sigma_{xx}(t_i) = \text{он}\sigma_{xx}$ та $\text{ов}\sigma_{xx}(t_i) = \text{ов}\sigma_{xx}$, де через $\text{он}\sigma_{xx}(t_i)$ позначено параметр функції Гауса у випадку вимірювань зразка з низьким рівнем активності РН. На відміну від випадку визначення величини $\text{ов}\delta_{xx}$, через можливу значну розбіжність експериментальних даних, значення $\text{он}\delta_{xx}$ доцільно встановлювати з використанням методів апроксимації числових рядів, наприклад найменших квадратів. Представлені згідно (8) параметри визначають активність та похибку її вимірювання в долях від МВПА. В цьому випадку показник $\Pi_{\text{вон}}$ стає функцією ${}_i\chi_{xx}$. Позначивши його через $\Pi_{\text{вон}}({}_i\chi_{xx})$ замість (1) запишемо:

$$\Pi_{\text{вон}}({}_i\chi_{xx}) = {}^{xx}K_{\text{кон}} \cdot \left[\frac{{}_i\chi_{xx} \cdot {}^mA_{xx}}{U_{xx}} + Z(P_{\kappa}, P) \cdot \frac{{}_i\chi_{xx} \cdot {}^mA_{xx}}{U_{xx}} \cdot \frac{{}_i\omega_{xx}}{{}_i\chi_{xx}} \right] \leq 1,0. \quad (12)$$

Аналогічно представляється і рівняння (2), яке застосовується за умови коли визначена ПЗ спектрометра активність РН є меншою за розраховане значення ${}^mA_{xx}$, або за уточненим критерієм меншою за $1,25 {}^mA_{xx}$. У випадку найчастіше вживаного коефіцієнту ${}^mZ = 1,2$, та допустимого значення відносної похибки МВПА, яке дорівнює 0,40, співвідношення (2) можна переписати наступним чином:

$$\Pi_{\text{вон}}({}_i\chi_{xx}) = {}^{xx}K_{\text{кон}} \cdot \left[1,2 \cdot \frac{{}_iA_{xx}}{U_{xx}} + Z(P_{\kappa}, P) \cdot 1,2 \cdot \frac{{}_iA_{xx}}{U_{xx}} \cdot 0,40 \right] \leq 1,0. \quad (13)$$

Структура співвідношень (12) і (13) є подібною за двох умов. Перша – це припущення, що в (12) коефіцієнт ${}^mZ = 1,0$. Друга умова стосується значення відносної похибки в момент вимірювання, який визначається часом t_i . Припустимо, що відносна похибка вимірювання у (12) описується функцією яка за наближення параметра $\chi_{xx}(t_i)$ до 1,0 добігатиме до значення $({}_i\omega_{xx} / {}_i\chi_{xx}) = 0,40$. Однією з таких найпростіших функцій, зокрема, може вважатись функція пучка прямих, які проходять через точку із зазначеними вище координатами. Її можна представити у вигляді лінійного рівняння виду:

$$\frac{{}_i\omega_{xx}}{{}_i\chi_{xx}} = \frac{{}_i\omega_{xx} - 0,40}{{}_i\chi_{xx} - 1} - \frac{{}_i\omega_{xx} - 0,40 \cdot {}_i\chi_{xx}}{({}_i\chi_{xx} - 1) \cdot {}_i\chi_{xx}}. \quad (14)$$

Застосування рівняння (14) в контексті співвідношень (12) та (13) показує, що два останніх можуть бути приведені до одного співвідношення. Його аналітичний вид з високим ступенем наближення буде описувати критерій належності поверхневої води до відповідної категорії її забрудненості. Використаємо спрощений запис функцій: $h\delta({}_i\chi_{xx}) = h\delta(\chi_{xx}(t_i))$ та $v\delta({}_i\chi_{xx}) = v\delta(\chi_{xx}(t_i))$, які доцільно застосувати для моделювання закону розподілу коефіцієнта запасу mZ при зміні параметру ${}_i\chi_{xx}$. Різкий, ступеневий перехід від значення 1,2 до 1,0 в точці ${}_i\chi_{xx} = 1,0$ з фізичних міркувань є некоректним. Причина полягає у використанні для розрахунку величини ${}^mA_{xx}$ усереднення значень різних розрахункових параметрів, наприклад швидкості лічби фонового та корисного сигналів. Точність визначення величини ${}^mA_{xx}$ за таких умов в силу статистичної природи останньої, не може різко змінюватись поблизу точки ${}_i\chi_{xx} = 1,0$. Окрім того, за

наближенням до нижньої межі вимірювання, як показує практика, спостерігаються лише незначні флуктуації вимірюваного середнього значення активності. Це підтверджує припущення, що коефіцієнт mZ не має мати різкої зміни, а повинен відображатись плавною функцією параметру ${}_i\chi_{Xx}$.

Зазначені вище міркування обумовлюють логічне припущення щодо розподілу по параметру ${}_i\chi_{Xx}$ коефіцієнта запасу ${}^mZ({}_i\chi_{Xx})$ як функції зростання ${}_i\chi_{Xx}$, коли йому ставиться у відповідність розподіл відносної похибки вимірювання активності. Враховуючи, що діапазон варіації коефіцієнта ${}^mZ({}_i\chi_{Xx})$ становить $({}^mZ({}_i\chi_{Xx}) - 1, 0)$, раціонально поставити у відповідність останньому діапазон зміни відносної похибки, який становить $(0,40 - {}_{ov}\tilde{\delta}_{Xx})$. Тут ${}_{ov}\tilde{\delta}_{Xx}$ є межею, до якої наближається відносна похибка і яка встановлена за даними серії вимірювань. Множник переходу β_{Xx} тоді визначатиметься за рівнянням:

$$\beta_{Xx} = 1 / (0,40 - {}_{ov}\tilde{\delta}_{Xx}). \quad (15)$$

Необхідні для встановлення ${}^mZ({}_i\chi_{Xx})$ величини можна встановити, якщо провести на одному лічильному зразку серію реєстрацій даних активності РН, послідовно збільшуючи в ній час вимірювання. За такого способу встановлення введемо позначення ${}_{он}\tilde{\sigma}_{Xx}$, як спеціальним чином усереднене по параметрам ${}_{он}^i\sigma_{Xx}$ значення. Також позначимо через ${}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}$ межу, до якої із зростанням ${}_i\chi_{Xx}$ наближається функція, яка апроксимує експериментальний ряд даних. Аналітичний вид функції розподілу похибки вимірювання ${}_n\tilde{\delta}({}_i\chi_{Xx})$ тоді може визначатись як:

$${}_n\tilde{\delta}({}_i\chi_{Xx}) = {}_{он}\tilde{\delta}_{Xx} + (0,40 - {}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}) \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} \cdot \frac{({}_i\chi_{Xx} - 1)^2}{{}_{он}\tilde{\sigma}_{Xx}^2} \right]. \quad (16)$$

Для знаходження значень двох величин ${}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}$ та ${}_{он}\tilde{\sigma}_{Xx}$ у рівнянні (16) за використання даних серії вимірювань необхідне встановлення додаткової умови. Її базою служить принцип мінімізації суми квадратів відхилень даних експерименту від функції апроксимації Гауса. Якщо позначити $(\Delta\delta)_{\min}^2$ як мінімальне значення, а через N число вимірювань активності в серії, то можна записати рівняння:

$$\sum_{i=1}^N \left\{ \frac{1}{0,40 - {}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}} \cdot ({}_i\delta_{Xx} - {}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}) - \exp \left[-\frac{1}{2} \cdot \frac{({}_i\chi_{Xx} - 1)^2}{{}_{он}\tilde{\sigma}_{Xx}^2} \right] \right\}^2 = (\Delta\delta)_{\min}^2. \quad (17)$$

Етапи розрахунку величин ${}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}$ та ${}_{он}\tilde{\sigma}_{Xx}$ згідно з (17) полягають у такому. За використання вимірних значень ${}_i\delta_{Xx}$ для фіксованого значення ${}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}$ визначається сума квадратів відхилень відносної похибки від апроксимуючої функції Гауса. Початкову величину ${}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}$ раціонально вибирати як зменшене на 0,0001 мінімальне значення ${}_i\hat{\delta}_{Xx} = ({}_i\delta_{Xx} - {}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}) / (0,40 - {}_{он}\tilde{\delta}_{Xx})$. В подальшому, проводячи варіацію ${}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}$ та ${}_{он}\tilde{\sigma}_{Xx}$ встановлюються діапазони їх змін, в яких сума квадратів відхилень буде наближатись до мінімуму. Послідовною підстановкою зазначених величин із зменшеним кроком дискретності, який обумовлено необхідною точністю, визначаються кінцеві значення ${}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}$ та ${}_{он}\tilde{\sigma}_{Xx}$. За такої процедури ${}_{он}\tilde{\sigma}_{Xx}$ виступає в якості своєрідно обрахованого усереднення по параметрам ${}_{он}^i\sigma_{Xx}$, а величина ${}_{он}\tilde{\delta}_{Xx}$ служить межею, до якої наближається апроксимуюча функція із зростанням ${}_i\chi_{Xx}$.

Величина коефіцієнту ${}^mZ({}_i\chi_{Xx})$ як функції ${}_i\chi_{Xx}$ визначається за використання встановлених згідно рівнянь (15), (16) і (17) величин. Його значення можна встановити, якщо представити зазначений коефіцієнт у вигляді комбінації постійної та змінної складової. Припустимо що в точці ${}_i\chi_{Xx} = 1,0$ коефіцієнт ${}^mZ({}_i\chi_{Xx})$ дорівнює 1,2. Тоді рівняння для розрахунку ${}^mZ({}_i\chi_{Xx})$ буде таким:

$$^mZ(i\chi_{Xx}) = 1,0 + 0,2 \cdot \left\{ \frac{\tilde{\delta}_{Xx}^{он} - \tilde{\delta}_{Xx}^{ов}}{0,40 - \tilde{\delta}_{Xx}^{ов}} + \frac{0,40 - \tilde{\delta}_{Xx}^{он}}{0,40 - \tilde{\delta}_{Xx}^{ов}} \cdot \exp \left[-\frac{1}{2} \cdot \frac{(i\chi_{Xx} - 1)^2}{\tilde{\sigma}_{Xx}^{он2}} \right] \right\}. \quad (18)$$

Зазначимо наступне. Рівняння (18) фіксує початкове значення $^mZ(i\chi_{Xx})=1,2$. У випадку коли за умовами випробування необхідна його зміна, то тоді множник 0,2 слід замінити на заздалегідь визначену величину. Її можна розрахувати як $^mZ(i\chi_{Xx}) - 1$. При встановленні $\tilde{\delta}_{Xx}^{он}$ та $\tilde{\sigma}_{Xx}^{он}$ згідно (16) і (17) слід розрізняти два випадки. Перший, це коли вимірне середнє значення активності $\bar{A}_{Xx}$ є більшим за $1,25 \cdot ^mA_{Xx}$, а другий – коли воно не перевищує його. Значення $\tilde{\delta}_{Xx}^{он}$ та $\tilde{\sigma}_{Xx}^{он}$ в першому випадку доцільно визначати за сукупністю усіх N вимірювань. Зауважимо, що зазначені величини одночасно виступають і в якості параметрів варіації. Аналогічно можна встановлювати і значення величин $\tilde{\delta}_{Xx}^{ов}$ та $\tilde{\sigma}_{Xx}^{ов}$.

Розглянемо випадок виконання умови щодо середнього значення, а саме $0 \leq \bar{A}_{Xx} \leq 1,25 \cdot ^mA_{Xx}$. Тоді параметр $i\chi_{Xx}$ вибирається наближеним до 1,0. Останнє застосовується для уникнення нульового значення у знаменнику рівняння (14). Рационально вибирати $i\chi_{Xx} = 1,0001$. З серії вимірювань тоді слід використовувати лише один набір даних, який відповідає тривалому часу вимірювання. За цих обставин, при $(\omega_{Xx} / i\chi_{Xx}) \leq 0,4$ та $N = 1$, величина $\tilde{\sigma}_{Xx}^{он}$ для вимірних значень $i\chi_{Xx}$, ω_{Xx} , $^mA_{Xx}$ відповідатиме результату, який згідно з рівнянням (11) при заміні $\delta_{Xx}^{он}$ на $\tilde{\delta}_{Xx}^{он}$ можна встановити згідно співвідношення:

$$[-(i\chi_{Xx} - 1)^2 / 2 \cdot (\sigma_{Xx}^{он})^2] = \ln [(\delta_{Xx}(t_1) - \tilde{\delta}_{Xx}^{он}) / (0,40 - \tilde{\delta}_{Xx}^{он})]. \quad (19)$$

Розглянемо випадок, за якого $\bar{A}_{Xx} \leq 1,25 \cdot ^mA_{Xx}$, а $(\omega_{Xx} / i\chi_{Xx}) > 0,40$. Обчислення $\tilde{\sigma}_{Xx}^{он}$ методом мінімізації відхилення за варіації значень параметрів $\tilde{\delta}_{Xx}^{он}$ і $\tilde{\sigma}_{Xx}^{он}$ тоді визначатиме $\tilde{\sigma}_{Xx}^{он}$ як величину наближену до нуля. Її мінімальне значення також доцільно зафіксувати на рівні добавки до значення $i\chi_{Xx} = 1,0$, тобто послідовний перебір значень величини $\tilde{\sigma}_{Xx}^{он}$ рационально починати з $\tilde{\sigma}_{Xx}^{овн} = 0,0001$. Початкове значення $\tilde{\delta}_{Xx}^{он}$ при цьому допустимо обрати як $0,999 \cdot (\omega_{Xx} / i\chi_{Xx})$.

Показник відповідності $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$, значення якого обраховується за даними серії вимірювань, можна розрахувати, якщо визначити нові значення параметрів $i\omega_{Xx}$ з (14). Їх можна розрахувати через значення функції апроксимації для вимірних даних, зберігши при цьому величин $i\chi_{Xx}$. Позначимо нові значення через $i\tilde{\omega}_{Xx}$. З урахуванням визначення множника β_{Xx} в (15) та величини $\delta_{Xx}(i\chi_{Xx})$ згідно (16), розрахункове значення $i\tilde{\omega}_{Xx}$ встановлюється згідно рівняння $i\tilde{\omega}_{Xx} = \delta_{Xx}(i\chi_{Xx}) \cdot i\chi_{Xx}$.

Виходячи з представлених вище результатів, з урахуванням співвідношень (12), (13), (14), (16) і (18), можна записати аналітичний вираз узагальненого критерію належності випробовуваного зразка поверхневої води до відповідної категорії забрудненості. Вираз нерівності критерію є наступним:

$$\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Xx}) = \frac{K_{\text{Кон}}^{Xx}}{U_{Xx}} \cdot \{ ^mZ(i\chi_{Xx}) \cdot i\chi_{Xx} \cdot ^mA_{Xx} \cdot [1 + Z(P_K, P) \cdot (\frac{i\tilde{\omega}_{Xx} - 0,40}{i\chi_{Xx} - 1} - \frac{i\tilde{\omega}_{Xx} - 0,40 \cdot i\chi_{Xx}}{(i\chi_{Xx} - 1) \cdot i\chi_{Xx}})] \} \leq 1,0. \quad (20)$$

Співвідношення (20) є універсальним. Воно поєднує випадки, які стосуються знаходження величини $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$ за нерівностями (12) та (13). Вихідними для розрахунків служать вимірні параметри $i\chi_{Xx}$, $i\omega_{Xx}$, $^mA_{Xx}$. В такий же якості виступають і попередньо встановлені величини $\tilde{\delta}_{Xx}^{ов}$, $\tilde{\delta}_{Xx}^{он}$, $\tilde{\sigma}_{Xx}^{он}$ та число вимірювань N . Інформація про них є необхідною для розрахунку коефіцієнту $^mZ(i\chi_{Xx})$ при різних $i\chi_{Xx}$ та інших величини з рівнянь (16) і (17). Технологічними

параметрами служать маса зразка, час t_i та значення $^{Xx}K_{Kon}$ і U_{Xx} , які в процесі випробування можуть змінюватись.

Застосування співвідношень і алгоритму для визначення показника $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$ проілюструємо на прикладі первинних даних вимірювання, графіки яких представлені на рис.. Використаємо дані зразків №2 та №4. Така ілюстрація базується на можливості виділенні у співвідношеннях (12), (13) та (20) множника, який включає коефіцієнт $^{Xx}K_{Kon}$ та величину ДР U_{Xx} . Технологічні параметри МВВ, як то об'єм води та маса зразка для аналізу визначені такими, які, зазвичай, відповідають дослідженням природних джерел забезпечення населення питною водою. Зазначені зразки мають різну активність. Її середнє значення для зразка №4 наближено до величини 5,7, а для зразка №2 – до 10,1 Бк. Значення первинних та вторинних розрахункових параметрів у випадку зразка №4 представлено у таблиці 2.

Таблиця 2

Значення у відносних одиницях для зразка № 4 вихідних і вторинних розрахункових параметрів, коефіцієнтів $^mZ(iX_{Cs})$, $^{Cs}K_{Kon}$ та показників $\tilde{P}_{\text{вон}}(iX_{Cs})$ і $P_{\text{вон}}(iX_{Cs})$ за різних iX_{Cs}

Вихідні та вторинні параметри					Коефіцієнти та показники		
$_{\text{ов}}\tilde{\delta}_{Cs} = 0,2024$; $_{\text{он}}\tilde{\delta}_{Cs} = 0,3034$; $_{\text{он}}\tilde{\sigma}_{Cs} = 0,6166$; $N = 6$; $^{Cs}K_{Kon} = 0,0020$; $U_{Cs} = 5,550$ Бк/дм ³					$^mZ(i\chi_{Cs})$	$\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Cs})$	$P_{\text{вон}}(i\chi_{Cs})$
$i\chi_{Cs}$	$i\omega_{Cs}$	$^mA_{Cs}$, Бк/дм ³	$i\delta(i\chi_{Cs})$	$i\tilde{\delta}(i\chi_{Cs})$			
1,80425	0,62186	533,75	0,34186	0,344662	1,14399	0,56257	0,49058
2,40539	0,74710	371,25	0,31566	0,310593	1,10951	0,49122	0,44471
2,91333	0,88619	300,00	0,30527	0,304184	1,10302	0,47527	0,43129
3,23478	0,98187	258,75	0,30346	0,303536	1,10236	0,45462	0,41237
3,58486	1,08769	231,25	0,30056	0,303411	1,10224	0,45017	0,40738
3,79524	1,15149	210,00	0,30182	0,303403	1,10223	0,43279	0,39210

Наведені в табл. 2 результати відображують реальність того, що дослідженому зразку можливо поставити у відповідність зразок поверхневої води з активністю РН Cs-137 еквівалентною розглянутій. Дані свідчать про очікуване зменшення коефіцієнту $^mZ(i\chi_{Cs})$ із зростанням $i\chi_{Cs}$. Однак зменшення від величини 1,2 не досягає значення 1,0. Це пояснюється значною відносною похибкою вимірювання в дослідженому діапазоні активності, яка для $i\chi_{Cs}$ більших за 3,0 не опускається менше ніж 0,3. В той же час, в діапазоні зміни $i\chi_{Cs}$ від 1,0 до 2,0, значення $^mZ(i\chi_{Cs})$ є більшими і зменшуються від 1,2 до, орієнтовно, 1,12. Із зростанням $i\chi_{Cs}$ значення $^mZ(i\chi_{Cs})$ наближається до 1,10. Інформація з табл. 2 щодо результатів розрахунку показників $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$ і за рівнянням (12) $P_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$ отримана за значення ДР $U_{Cs} = 5,55$ Бк/дм³. ДР вибрано як найменший, за якого нерівність (20) може бути виконана. Згідно класифікації екологічного стану поверхневої води [8] таке значення ДР відповідає помірно забрудненим водам, які відносяться до 5 категорії забрудненості.

Представлені в табл. 2 дані свідчать також про зменшення значення розрахованих показників $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$ і $P_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$ по мірі зростання величини $i\chi_{Cs}$. Так, наприклад, показник $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$, величина якого для $i\chi_{Cs} = 1,80425$ становить 0,56257, зменшується до 0,45462 при зростанні $i\chi_{Cs}$ до 3,23478. Відповідно показник $P_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$ для цих же значень $i\chi_{Cs}$ зменшиться з 0,49058 до 0,41237. Таке зменшення є наслідком, як впливу коефіцієнту запасу $^mZ(i\chi_{Cs})$ на величину показника $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{Xx})$, так і впливу величини похибки вимірювання. Нагадаємо, що значення останньої розраховується за рівнянням (14) при використанні величин $i\tilde{\omega}_{Xx}$. Твердження базується на розрахунках, які проведені з даними вимірювання лічильного зразка № 2. Алгоритм їх проведення є аналогічним застосованому вище. При цьому встановлено нові значення величин

$\tilde{\delta}_{Cs}$ та $\tilde{\sigma}_{Cs}$, а також збережено технологічні параметри МВВ і величину ДР $U_{Cs} = 5,55$ Бк/дм³. Результати розрахунку представлені в табл. 3.

За наведеними у табл. 3 даними із зростанням $i\chi_{Cs}$ значення коефіцієнту ${}^mZ(i\chi_{Cs})$ все більше наближається до 1,0. В порівнянні з даними табл. 2 зменшення величин відносної похибки $i\delta(i\chi_{Cs})$ приводить до зменшення коефіцієнту ${}^mZ(i\chi_{Cs})$ у всьому діапазоні зростання $i\chi_{Cs}$. Так у порівнянні із зразком №4, коли за $\tilde{\sigma}_{Cs} = 0,6166$ для $i\chi_{Cs} = 2,91333$ значення ${}^mZ(i\chi_{Cs}) = 1,10302$, у випадку зразка №2, для якого $\tilde{\sigma}_{Cs} = 0,5143$, у випадку близького по значенню $i\chi_{Cs} = 2,85522$ коефіцієнт ${}^mZ(i\chi_{Cs})$ становитиме 1,01101. Це свідчить про чутливість величини ${}^mZ(i\chi_{Cs})$ до зміни похибки вимірювання в діапазоні значень $i\chi_{Cs}$ поблизу межі вимірювання. Збільшення точності вимірювання призводить до зменшення необхідності врахування впливу коефіцієнта ${}^mZ(i\chi_{Cs})$ на величину показника відповідності.

Таблиця 3

Значення у відносних одиницях для зразка № 2 вихідних і вторинних розрахункових параметрів, коефіцієнтів ${}^mZ(i\chi_{Cs})$, ${}^{Cs}K_{Kon}$ та показників $\tilde{P}_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$ і $P_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$ за різних $i\chi_{Cs}$

Вихідні та вторинні параметри					Коефіцієнти та показники		
$\tilde{\delta}_{Cs} = 0,2024$; $\tilde{\sigma}_{Cs} = 0,2130$; $\tilde{\sigma}_{Cs} = 0,5143$; $N = 6$; ${}^{Cs}K_{Kon} = 0,0020$; $U_{Cs} = 5,550$ Бк/дм ³					${}^mZ(i\chi_{Cs})$	$\tilde{P}_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$	$P_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$
$i\chi_{Cs}$	$i\omega_{Cs}$	${}^m_iA_{Cs}$, Бк/дм ³	$i\delta(i\chi_{Cs})$	$i\tilde{\delta}(i\chi_{Cs})$			
1,78923	0,48410	533,75	0,27056	0,27061	1,06904	0,48600	0,45681
2,85522	0,63766	371,25	0,22333	0,21327	1,01101	0,48585	0,48520
3,46667	0,74357	300,00	0,21449	0,21301	1,01073	0,47643	0,47204
4,00000	0,83821	257,50	0,20955	0,21300	1,01073	0,47184	0,46528
4,41081	0,91641	231,25	0,20776	0,21300	1,01073	0,46726	0,45997
4,60952	0,97362	210,00	0,21122	0,21300	1,01073	0,44344	0,43798

Співставлення даних табл. 2 і табл. 3 показує, що значення показника $\tilde{P}_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$ у випадку дослідження зразка з меншою активністю перевищують аналогічні значення, отримані для зразка більшої активності. Це є результатом досягнення в процесі випробування за використаної геометрії спектрометричного вимірювання близьких до мінімальних значень відносної похибки вимірювання активності РН Cs-137. Значення показника $\tilde{P}_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$ додатково збільшується і через величину коефіцієнта ${}^mZ(i\chi_{Cs})$. Вони також перевищують значення показника $P_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$, які розраховані за співвідношенням (12). Хоча таке перевищення є незначним, але воно означає, що рівність правої та лівої частини у (20) може бути досягнута за менших значень активності РН Cs-137 у поверхневій воді, аніж у випадку розрахунку показника $P_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$. Останній висновок щодо показника $\tilde{P}_{\text{вдн}}(i\chi_{Cs})$ за використання представлених алгоритму та співвідношень може розглядатись як додаткова гарантія належності досліджуваної води до відповідно встановлених класу чистоти та категорії забрудненості.

Висновки. Наведений та обговорений вище матеріал служить підґрунтям для формулювання наступних положень, які резюмують результати: представленого дослідження:

1. Проведено аналіз задачі співставлення показників радіаційної дії забрудненої РН ¹³⁷Cs і ⁹⁰Sr поверхневої води та ДР їх активності. Застосовано новий підхід до визначення показника відповідності $\tilde{P}_{\text{вдн}}(i\chi_{Xx})$, в якому оцінюється наявність та враховується величина ДР ¹³⁷Cs або ⁹⁰Sr. В основі підходу лежить припущення про залежність показника $\tilde{P}_{\text{вдн}}(i\chi_{Xx})$ від параметру відхилення $i\chi_{Cs}$. Параметр визначено в долях МВПА. Складовою частиною показника відповідності є коефіцієнт запасу ${}^mZ(i\chi_{Cs})$, який також визначено як функцію $i\chi_{Cs}$. Роль коефіцієнта полягає в забезпеченні компенсації неточностей розрахунку МВПА. Підхід

встановлює новий алгоритм та модель розрахунку критерію співставлення, в склад якого включено метрологічні характеристики спектрометра та вимоги МВВ.

2. Отримано рівняння для розрахунку коефіцієнта ${}^mZ(i\chi_{Cs})$. У ньому використана модель, за якою опис розподілу відносної похибки вимірювання проводиться нормованою функцією Гауса. Придатність останньої обґрунтована результатами вимірювання активності РН ${}^{137}\text{Cs}$ у модельних лічильних зразках. Застосовується представлення аргументу функції Гауса двома параметрами. Одним з них є параметр відхилення, інший регулює ширину піку розподілу. Для встановлення значення обох параметрів функції використано метод мінімізації квадратів відхилень. Експонента в такому випадку оптимально описує результат експерименту. Встановлено аналітичний вид універсального рівняння для розрахунку показника $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{\text{ХХ}})$. В ньому використовуються дані, як про середнє значення активності, так і про похибку її вимірювання. Застосовано і ряд положень теорії оперативної характеристики випробування. Рівняння поєднує два окремих співвідношення, за якими розрахунок коефіцієнта відповідності щодо РН ${}^{137}\text{Cs}$ або РН ${}^{90}\text{Sr}$, зазвичай, передбачає наявність додаткової інформації про точність вимірювання та прийняття рішення оператором спектрометра про вибір моделі обчислення показника.

3. Наведені для різних величин $i\chi_{Cs}$ результати щодо значень показника $\tilde{P}_{\text{вон}}(i\chi_{\text{ХХ}})$, коефіцієнта ${}^mZ(i\chi_{Cs})$ та інших проміжних параметрів розрахунку показали їх адекватність моделі, яка закладена у алгоритм обрахунку даних спектрометричного вимірювання. Розрахункові величини, які отримані на базі двох досліджених модельних зразків, підтвердили правомірність запропонованого підходу та ефективність алгоритму, в першу чергу для випадку інтервалів відхилень $i\chi_{Cs}$, які розташовані поблизу нижньої межі вимірювання активності. Крім того, на основі отриманих при випробуванні даних про активність ${}^{137}\text{Cs}$ або ${}^{90}\text{Sr}$ у зразку поверхневої води забезпечуються можливості та надається гарантія однозначного трактування щодо віднесення води до відповідно визначеної категорії забрудненості.

4. Практична цінність результатів полягає у уніфікації підходів та алгоритмів обчислення показників радіаційної дії РН Cs-137 та Sr-90, які можуть бути наявними у поверхневій воді. Результати також торкаються питань вдосконалення засобів та методів оцінювання її якості. Орієнтація дослідження на питання застосування експериментально визначених величин активності розширює можливості використання засобів спектрометричного контролю. Новий підхід та шляхи вирішення задачі віднесення води із встановленою активністю РН до відповідної категорії забрудненості видаються корисними і у випадку ряду інших показників екологічного стану водних об'єктів. Представлені результати можуть бути корисними при постановці та розгляді задач моніторингу і прогнозування якості води на територіях з фоновим забрудненням гідроекосистем, зокрема природних парків та заповідного фонду.

Література

- 1 Водна Рамкова Директива ЄС 2000/60/ЄС : Основні терміни та їх визначення (офіційний переклад). – К. : Консорціум компаній RODECOVERSeau–WRC, 2006. – 244 с.
- 2 Герасимова Е.Б., Герасимов Б.И. Метрология, стандартизация, сертификация: Уч.–е пособие. – М.: ФОРУМ: ИНФРА-М, 2010. – 224 с.
- 3 Гідроекологічне обґрунтування безпечного та збалансованого розвитку природно-антропогенних систем Передкарпаття: монографія / Ю.С. Ющенко, О.М. Гончар, В.В. Григорійчук та ін.; за ред. Ю.С. Ющенка. – Чернівці: ЧНУ ім. Юрія Федьковича, 2017. – 472 с.
- 4 Евчук О.П. Екологічна оцінка якості вод річки Ломниця за інтегральним екологічним індексом / О.П. Евчук // Екологічна безпека та збалансоване ресурсокористування. Науково-технічний журнал. Івано-Франківськ: Видавництво ІФНТУНГ, №2(16), 2017. – С. 57–60.
- 5 Жежеря В.А. Деякі методичні аспекти при дослідженні співіснуючих форм металів у поверхневих водах у розчиненому стані / В.А. Жежеря. П.М. Линник// Проблемы гидрологии, гидрохимии, гидроэкологии: монографія. – К.: Ника-Цень, 2019. – С. 184–191.
- 6 Лаврова Т.В. Статистическая оценка данных о гидрохимическом составе и радиоактивном загрязнении поверхностных вод в районе влияния бывшего уранового производства / Т.В. Лаврова, О.В. Войцехович, С.Н. Шумов, С.В. Тодосиенко // Проблемы гидрологии, гидрохимии, гидроэкологии: монографи. – К.: Ника-Цень, 2019. – С. 261–274.
- 7 Методика екологічної оцінки якості поверхневих вод за відповідними категоріями / [А.В. Грищенко, О.Г. Масенко, Г.А. Вертиченко та ін.]. – Харків: Укр. НДІ ЕП. – 2012. – 37 с.

- 8 Методика встановлення і використання екологічних нормативів якості поверхневих вод суші та естуаріїв України / В.Д. Романенко, В.М. Жукинський, О.П. Оксіук та ін. – К.: 2001. – 48с.
- 9 Методичні рекомендації для ведення спостережень за радіоактивним забрудненням навколишнього середовища / За ред. О.В.Войцеховича, В.В.Канівця. – К.: УкрНДГМІ, 2001.–218 с.
- 10 Мирзоева Н.Ю. Радиозкологические последствия аварии на Чернобыльской атомной станции для водоёмов Украины (от водоёма-охладителя ЧАЭС до Чорного моря в период 1986 – 2008 гг. / Н.Ю.Мирзоева // Наукові праці. Техногенна безпека. – Вип.126, Том139,2010. – С. 58–63.
- 11 Процеси формування хімічного складу поверхневих вод: монографія / В.І. Осадчий, Б.Й. Набиванець, П.М. Линник та ін. – К.: Ніка-Центр, 2013. – 240 с.
- 12 Радкевич М.Я. Метрология, стандартизация и сертификация: Учеб. для вузов / М.Я. Радкевич, А.Г. Схиртладзе, Б.И. Лактионов, 2-е изд., доп. – М.: Высш. Шк., 2006. – 800 с.
- 13 Раздел III. Оценка экологического состояния речных водных объектов / Управление трансграничным бассейном Днестра: суббассейн реки Припяти: монография // под ред. А.Г. Ободовского, А.П. Станкевича и С.А. Афанасьева. – К.: Кафедра, 2012. – С. 146–341.
- 14 Сінченко В.Г. Спектриметричне визначення вмісту ^{137}Cs і ^{90}Sr у поверхневих прісних водах суші в контексті оцінки їх якості за екологічними критеріями / В.Г. Сінченко // Екологічна безпека та збалансоване ресурсокористування. Науково-технічний журнал. Івано-Франківськ: Видавництво ІФНТУНГ, №1(21), 2020. – С. 57–69.
- 15 Ткалич В.Л., Лабковская Р.Я. Обработка результатов технических измерений: Учебное пособие. – СПб: СПбГУ ИТМО, 2011. – 72 с.
- 16 Gudkov D., Shevtsova N., Pomortseva N., Dzyubenko E., Yavnyuk A., Kaglyan A., Nazarov A. Aquatic plants and animals in the Chernobyl exclusion zone: effects of long-term radiation exposure on different levels of biological organization. Genetics, Evolution and Radiation. V. Korogodina, C. Mothersill, S. Inge-Vechtomov, C. Seymour (Eds.). Cham: Springer International Publishing AG. 2016. P. 287–302.
- 17 Volkova Ye. N., Belyayev V. V., Pryshliak S. P. Several Aspects of Forming of the Absorbed Dose of Emerged Aquatic Plants. Hydrobiological Journal. 2017. V. 53, Iss. 6. P. 68–76.

V. Sinchenko

L. I. Medved's research center of preventive toxicology, food and chemical safety, Ministry of Health, Ukraine (State Enterprise)

SPECTROMETRY OF RADIONUCLIDES Cs-137 AND Sr-90 IN SURFACE FRESH WATERS AND CONFORMITY OF THEIR ACTIVITY TO PERMISSIBLE LEVELS

The comparison of the radiation effect rates of the surface water polluted with radionuclides ^{137}Cs and ^{90}Sr and permissible levels (PL) of their activity is considered. A new approach to calculating the compliance index (CI), assessing the content of ^{137}Cs or ^{90}Sr in water, is proposed. The approach is based on the assumption of the CI dependence on the relative value of the deviation parameter. This parameter is determined in fractions of the minimum measured specific activity (MMSA) by the spectrometer. The influence of storage coefficient on the CI, which compensates for the inaccuracies in the MMSA calculation, is investigated. The algorithm for defining the stock coefficient as a function of the deviation parameter is proposed. The algorithm is based on the data from a series of measurements of a load.

The equation for calculating the storage coefficient is presented. It uses a model to describe the distribution of the relative measurement error of the normalized Gaussian function. The suitability of the latter is justified by the results of measuring the activity of ^{137}Cs . The representation of the Gaussian function argument by two parameters is applied. One is the deviation parameter, the other one adjusts the width of the distribution peak. The method of squared deviation minimization is used to define both parameters of the Gaussian function. According to the obtained values, the exponent optimally describes the experiment result. The universal equation for calculating the CI is established. A number of provisions of the theory of operational characteristics of the test are applied. The equation combines two separate relations, according to which the relation between CI and ^{137}Cs or ^{90}Sr can be calculated in the problem of the radioactive surface-water quality analysis.

The calculations results of CI, storage coefficient and other parameters are presented. Measurement data of ^{137}Cs activity in two model samples-analogues of the possible loads of surface water were used. The efficiency of the algorithm used for calculating the deviation intervals near the lower limit of measuring the activity of radionuclides is proved. The results correspond to the physical preconditions that are embedded in the spectrometric data processing model. The proposed ratios are efficient in determining the cleanliness class and water contamination rate in the process of interpreting the test

results.

Key words: contamination rate; ecological status criteria; radiation effect rates; spectrometry of radionuclides ^{137}Cs and ^{90}Sr ; surface fresh water.

References

- 1 1 Vodna Ramkova Dyrektyva YeS 2000/60/IeC : Osnovni terminy ta yikh vyznachennia (ofitsiyni pereklad). – K. : Konsortsium kompanii RODECOVERSeau–WRC, 2006. – 244 s.
- 2 Gerasimova E.B., Gerasimov B.I. Metrologiya, standartizatsiya, sertifikatsiya: Uch.–e posobie. – M.: FORUM: INFRA-M, 2010. – 224 s.
- 3 Hidroekologichne obgruntuvannia bezpechnoho ta zbalansovanoho rozvytku pryrodno-antropohennykh system Peredkarpattia: monohrafiia / Yu.S. Yushchenko, O.M. Honchar, V.V. Hryhoriichuk ta in.; za red. Yu.S. Yushchenka. – Chernivtsi: ChNU im. Yu. Fedkovycha, 2017. – 472 s.
- 4 Evchuk O.P. Ekologichna otsinka yakosti vod rychky Lomnytsia za intehralnym ekologichnym indeksom / O.P. Evchuk // Ekologichna bezpeka ta zbalansovane resursokorystuvannia. Naukovo-tekhnichnyi zhurnal. Ivano-Frankivsk: Vydavnytstvo IFNTUNH, №2(16), 2017. – S. 57–60.
- 5 Zhezheria V.A. Deiaki metodychni aspekty pry doslidzhenni spivisnuiuchykh form metaliv u poverkhnevnykh vodakh u rozchynenomomu stani / V.A. Zhezheria. P.M. Lynnyk// Problemy hydrolohyy, hydrokhymyy, hidroekologyy: monohrafiy. – K.: Nyka-Tsen, 2019. – S. 184–191.
- 6 Lavrova T.V. Statisticheskaya otsenka dannykh o gidrohimicheskom sostave i radioaktivnom zagryaznenii poverhnosnykh vod v rayone vlianiya byivshogo uranovogo proizvodstva / T.V. Lavrova, O.V. Voytsekhovich, S.N. Shumov, S.V. Todosienko // Problemy gidrologii, gidrohimii, gidroekologii: monografiia. – K.: Nika-Tsen, 2019. – S. 261–274.
- 7 Metodyka ekologichnoi otsinky yakosti poverkhnevnykh vod za vidpovidnymi katehoriiami / [A.V. Hryshchenko, O.H. Masenko, H.A. Vertychenko ta in.]. – Kharkiv: Ukr. NDI EP. – 2012. – 37 s.
- 8 Metodyka vstanovlennia i vykorystannia ekologichnykh normatyviv yakosti poverkhnevnykh vod sushi ta estuarii Ukrainy / V.D. Romanenko, V.M. Zhukynskyi, O.P. Oksiiuk ta in. – K.: 2001. – 48s.
- 9 Metodychni rekomendatsii dlia vedennia sposterezhen za radioaktyvnym zabrudnenniam navkolyshnoho seredovyscha / Za red. O.V. Voitsekhovycha, V.V. Kanivtsia. – K.: Ukr NDHMI, 2001.– 218 s.
- 10 Mirzoeva N.Yu. Radioekologicheskie posledstviya avarii na Chernobyil'skoy atomnoy stantsii dlia vodoyomov Ukrainy (ot vodoyoma-ohladytelya ChAES do Chornogo morya v period 1986 – 2008 gg. / N.Yu. Mirzoeva // Naukovi pratsi. Tehnogenna bezpeka. – Vyp. 126, Tom 139, 2010. – S. 58–63.
- 11 Protsey formuvannia khimichnoho skladu poverkhnevnykh vod: monohrafiia / V.I. Osadchii, B.I. Nabyvanets, P.M. Lynnyk ta in. – K.: Nika-Tsentr, 2013. – 240 s.
- 12 Radkevich M.Ya. Metrologiya, standartizatsiya i sertifikatsiya: Ucheb. dlya vuzov / M.Ya. Radkevich, A.G. Shirladze, B.I. Laktionov, 2-e izd., dop. – M.: Vyssh. Shk., 2006. – 800 s.
- 13 Razdel III. Otsenka ekologicheskogo sostoyaniya rechnykh vodnykh ob'ektov / Upravlenie transgranichnym basseynom Dnepra: subbasseyn reki Pripyati: monografiia // pod red. A.G. Obodovskogo, A.P. Stankevicha i S.A. Afanaseva. – K.: Kafedra, 2012. – S. 146–341.
- 14 Sinchenko V.H. Spektrometrychne vyznachennia vmistu ^{137}Cs i ^{90}Sr u poverkhnevnykh prisnykh vodakh sushi v konteksti otsinky yikh yakosti za ekologichnymi kryteriiamy / V.H. Sinchenko // Ekologichna bezpeka ta zbalansovane resursokorystuvannia. Naukovo-tekhnichnyi zhurnal. Ivano-Frankivsk: Vydavnytstvo IFNTUNH, №1(21), 2020. – S. 57–69.
- 15 Tkalic V.L., Labkovskaya R.Ya. Obrabotka rezultatov tekhnicheskikh izmereniy: Uchebnoe posobie. – SPb: SPbGU ITMO, 2011. – 72 s.
- 16 Gudkov D., Shevtsova N., Pomortseva N., Dzyubenko E., Yavnyuk A., Kaglyan A., Nazarov A. Aquatic plants and animals in the Chernobyl exclusion zone: effects of long-term radiation exposure on different levels of biological organization. Genetics, Evolution and Radiation. V. Korogodina, C. Mothersill, S. Inge-Vechtomov, C. Seymour (Eds.). Cham: Springer International Publishing AG. 2016. P. 287–302.
- 17 Volkova Ye. N., Beliayev V. V., Pryshliak S. P. Several Aspects of Forming of the Absorbed Dose of Emerged Aquatic Plants. Hydrobiological Journal. 2017. V. 53, Iss. 6. P. 68–76.

Надійшла до редакції 4 січня 2021 р.