附件 7

《应急监测中环境样品γ核素测量 技术规范(征求意见稿)》 编制说明

《应急监测中环境样品 γ 核素测量技术规范》标准编制组 二〇一九年七月

1	项目背景	126
	1.1 任务来源	126
	1.2 工作过程	
2	标准制修订必要性分析	127
3	国内外相关标准情况	128
	3.1 核与辐射应急监测对γ核素分析的要求	128
	3.2 国际应急监测中γ核素测量技术相关标准、规范情况	133
	3.3国内γ核素测量技术相关标准情况	137
4	标准制修订的基本原则和技术路线	
	4.1 基本原则	
	4.2技术路线	
5	标准主要技术内容	140
	5.1 应急监测中γ分析方法要求的确定	140
	5.2 样品的初筛	140
	5.3样品制备及测量	141
	5.4 谱仪刻度	
	5.5 不确定度的评定	145
	5.6 核素库	145
6	与国内外同类标准或技术法规的水平对比和分析	146
7	参考文献	146
阶	1. 实验验证报告	148

1 项目背景

1.1 任务来源

2018年, 生态环境保护部科技标准司下达环保标准《应急监测 中γ核素分析方法》编制任务,项目编号为2018-58。

本标准的承担单位为生态环境部核与辐射安全中心。

根据 2019 年 3 月标准征求意见稿技术审查会专家建议,本标准 名称修改为《应急监测中环境样品γ核素测量技术规范》。

1.2 工作过程

标准编制任务下达后,我单位成立了标准编制组,负责人为岳会 国研究员,参加人员有黄东辉、董淑强、任建保等;浙江省辐射环境 监测站、北京市辐射安全技术中心、安徽省辐射环境监督站、中国计 量科学研究院和华北电力大学共5家单位作为标准编制协作单位。

2018年3月,召开项目启动会,讨论标准编制的基本技术路线 和拟解决关键技术问题。

2018年6月,组织召开标准编制开题论证会,论证委员会通过 该标准的开题论证,认为开题论证材料齐全、内容完整;标准主编单 位对国内外方法标准及文献进行了充分调研;标准定位基本准确,技 术路线合理可行。

2018年6月至2018年12月,项目编制组通过文献调研、理论 计算和实验验证相结合的方法,全面开展标准编制工作,形成征求意 见稿初稿。

2019年2月至3月,邀请生态环境保护系统的黑龙江省辐射环境监督站、上海市辐射环境监督站、山东省核与辐射环境管理中心、 广东省环境辐射监测中心、广西壮族自治区辐射环境监督管理站和四 川省辐射环境管理监测中心站6家省级辐射环境监测机构开展方法的相关实验验证工作。

2019年3月1日,组织召开该标准征求意见初稿专家咨询会, 会议认为标准征求意见初稿内容全面、结构合理,经进一步完善后可 作为下一步工作的基础。

2019年3月19日,组织召开标准征求意见稿技术审查会,审查 委员会通过该标准征求意见稿的技术审查;认为该标准征求意见稿材 料齐全、内容完整;标准编制单位对国内外方法标准及文献进行了充 分调研;标准定位准确,技术路线合理可行,标准内容具有可操作性。

2019年3月至今,根据标准征求意见稿技术审查会意见,修改 完善形成本征求意见稿上报稿。

2 标准制修订必要性分析

核与辐射事故中,γ核素测量技术是应急监测的最主要、最直接 实验室分析手段之一。鉴于核与辐射事故应急的紧迫性,尤其是事故 早、中期,可能面临大量的各类环境介质γ核素分析任务,需要尽可 能快速、规范、准确可靠的获取第一手γ核素监测数据,该测量技术 可无需复杂的样品制备过程,且往往可通过牺牲一定的准确性来快速 获取测量结果,为应急决策和公众舆情应对提供第一手重要的核素分 析数据。

截至标准编制任务下达时,我国暂没有制定专门针对核与辐射应 急监测的γ核素测量的技术规范,且已有的γ核素测量相关标准,主要 针对实验室条件下常规样品的高准度γ核素测量,通常γ核素活度为环 境级水平、无需对样品来源进行初筛,报告结果时效性要求不高,对 样品的前处理采用常规的制备方式(如生物样品需烧灰制样、淡水蒸 干测量残渣、土壤烘干和研磨并过筛等),土壤样品还需放置一段时间待相关核素母子体放射性平衡后再测量,为获取感兴趣峰较好的统 计不确定度测量时间通常需要一天到几天不等,因此,这些常规样品 测量标准前处理、分析流程较长,一般一个样品从样品制备到得到测 量结果需要一天到几十天不等,实效性要求不高,且处理流程较复杂, 没有结合应急监测样品的特点,不能完全满足应急监测的要求。

如果一般实验室条件下的测量方法直接应用于应急监测,尤其是 事故的早、中期,应急时样品来源复杂,可能会给实验室、样品处理 设施和测量装置带来不可预见的污染,从而影响测量结果和实验室的 正常运行,且不能满足γ核素监测结果快速、准确、可靠的要求;因 此,针对应急监测的特点,需要简单、可行的技术规范,以有利于科 学有效的开展应急响应、应急决策工作。

另外, 在标准编制过程中, 2018年, 国家卫生健康委员会发布 了《应急情况下放射性核素的γ能谱快速分析方法》(WS/T 614-2018), 原则上对应急情况下样品的放射性核素γ能谱仪快速分析方法进行了 一定程度的规范, 但未对应急监测中面临的样品来源不明且活度差异 大情况、未刻度谱仪快速刻度方法、数据报送要求等技术内容进行规 范。

因此,本标准结合核与辐射事故应急监测工作特点,制定适用应 急工作要求的环境样品γ核素测量技术规范,以有效提升各级辐射环 境监测机构的应急监测技术能力,保障公众健康,保护环境安全。

3 国内外相关标准情况

3.1 核与辐射应急监测对γ核素分析的要求

核与辐射应急监测的目的在于快速、准确收集环境放射性状况相关信息,为防护决策和剂量评价提供数据依据。本标准主要侧重于核

— 128 —

事故,尤其是核事故早、中期,以满足应急监测对γ核素分析方法的 需求。

早年,在核与辐射事故应急中,为防止确定性效应并尽可能的减 少随机效应,应急决策的通用基准通常采用剂量评价结果,剂量评价 结果需结合评价软件和相关参数,数据来源于预测结果而非直接监测 结果,引入的不确定度大且难于评估。近年来,国际原子能机构 (IAEA)在通用基准基础上,进一步完善了与监测数据直接相关的 操作干预水平(Operational Intervention Levels, OIL),即来源于应急 监测中现场和环境样品的实测数据,用于指导事故早、中期应急监测 现场和实验室测量工作,服务于应急决策。

2011年, IAEA 安全标准系列《核或辐射应急准备与响应基准》 (Criteria for use in preparedness and response for a nuclear or radiological emergency, No. GSG 2)提供了由核与辐射事故引起的大 面积和中等规模污染情况下应急防护实施策略范本,其中大面积污染 情况下,应急防护实施策略如图 1 所示。经过福岛核事故的经验反馈, 日本在其原子力灾害对策方针中全面采用了该策略体系,结合日本的 具体情况,制订了相关操作干预水平(如表 1 所示)。操作干预水平 策略体系充分考虑了核与辐射应急监测的特点,可操作性强,主要判 断外照射剂量率测量值是否超过预设的操作干预水平(OIL1、OIL2、 OIL3)、人员表面污染水平是否超过预设水平(OIL4)及主要饮品(水、 牛奶)和食物来源(主要是生物样品)是否超过预设水平(OIL5、 OIL6),其中主要饮品和食物对应的γ核素的测量结果与预设水平均为 γ核素的活度浓度水平,γ核素的测量结果与预设水平均来源于应急监 测中γ核素测量结果。

2013 年, IAEA 出版物《轻水堆严重状态下保护公众措施》(Action to protect the public in an emergency due to severe conditions at a light

— 129 —

water reactor, EPR-NPP public protective actions)亦为发生轻水堆事故 应急监测方案的制定提供依据,要求在一周内(事故的早、中期), 对环境样品(如食物、牛奶和水)进行快速采集和γ核素分析,测量 结果用于与相关操作干预水平(OIL)的直接比较,其中测量结果来 源于实验室的γ核素测量技术。

目前,鉴于我国暂没有现行的国家和行业标准直接用于指导应急 监测工作的开展。因此,可借鉴操作干预水平策略体系,结合我国具 体国情,用于指导核与辐射应急监测的有效开展。





表1	操作干预水平	(OIL)	设定内容	(IAEA 及日本)
----	--------	----------------	------	------------

		日本原子ナ (201]灾害x 16 年版	†策方针)		IAEA (2	-GSG-2 011)		
基准	主种类	基准的概要	初始设	设定值		OIL 初始	设定值		
紧急防	OIL1	居民在数小 时内撤离和 室内隐蔽	地面以 500µS	以上 1 米处的 w/h	Jγ剂量率:	地面以上 剂量率: 表面污染 β: 2000c	1 米处的 γ 1000μSv/h; : α: 50cps, ps		
护 措 施	OIL4	人员去污	β: 40 (离月 20cm)	000cpm 皮肤数 cm,)	入射窗面积	 距离反床 10cm, γ_f 量率 1µSv/h; 表面污染: α: 50cps β: 1000cps 			
早期防护措施	OIL2	居民在一周 左右时间内 暂时避迁; 停止消费本 地农产品	地面以 20µSv	以上 1 米处的 /h	Ιγ剂量率:	地面以上 1 米处的 剂量率: 100μSv/h; 表面污染: α: 10cps, β: 200cp			
饮食物摄入蛇	OIL3 (食 物控 制筛 査基 准)	确定实施食 物核素分析 的地区	地面以 0.5µS ⁵	以上 1 米处的 v/h	Ιγ剂量率:	地面以上 剂量率: 表面污染 α: 2cps, β: 20cps	1 米处的 γ 1μSv/h; :		
行制	OIL5				ŝ	总 α: 5B 总 β: 100	q/kg)Bq/kg		
你			核素	饮用水等 (Bq/kg)	食物等 (Bq/kg)	核素	(Bq/kg)		
食物		合物珥〉坎	放射 性碘	300	2000	I-131	3000		
初摄入控制	OIL6	制基准	放射 性铯	200	500	Cs-137	2000		
			铀	20	100	U-238	100		
			钚	1	10	Pu-239	50		

因此,核与辐射应急的早、中期,结合核与辐射应急监测中操作 干预水平策略,应急监测中γ分析测量主要关注饮用水、食物(主要 是生物)、牛奶(一般情况下较少涉及或不涉及)中的代表性核素(如

— 132 —

I-131 和 Cs-137),且操作干预水平(OIL)对应γ核素活度浓度值较日常情况下环境样品高。

核与辐射事故的(中)后期,对监测数据的时效性要求相对较低, γ核素分析方法可参考日常情况下常规实验室条件下的现行标准,但 鉴于样品的来源复杂且活度差异较大,应着重考虑高活度样品的处理 和测量,防止交叉污染。

另外,应急监测同时服务于公众舆情应对,事故的各阶段还应关 注公众关心的大气、土壤、水、生物(地产农作物、指示生物)等环 境介质的监测,尤其是事故的早中期,要求监测数据可靠、快速、规 范。

综合以上,应急监测中γ核素测量技术较日常情况下常规实验室 条件的分析方法,有其自身的特点和要求。

3.2 国际应急监测中γ核素测量技术相关标准、规范情况

3.2.1 国际原子能机构相关规范情况

1999年, IAEA 出版物《核或辐射应急时通用监测程序》(IAEA TECDOC 1092) 推荐了核与辐射事故应急时,实验室γ谱仪的通用监测程序。

应急监测γ核素分析测量目的是测定空气、土壤、食品、水、牛 奶或任何其它样品中γ发射体的浓度,用于与操作干预水平(OILs) 和通用行动水平(GALs)相比较。

应急测量时γ核素分析测量的要求:针对于γ发射体,取样介质主要涉及气溶胶、土壤、牧草、食品、水和牛奶等;探测下限范围取决 于探测器效率,本底和测量时间;分析时间较短,范围一般为100到 1000s;测量不确定度范围与几何条件、探测器效率、刻度的精确度、 污染水平、核素等有关,一般为±5%到±20%。 样品的前处理要求:应避免污染谱仪系统及周围环境,可用塑料 膜或铝膜包上探测器本身。不同放射性水平样品必须分开,不要用测 量低放射性样品的探测器测量高活度的样品,反之亦然。

样品在实验室的前处理,推荐首先使用剂量率水平筛选待测样品,区分放射性高的样品;然后区别处理不同活度的样品,以避免交 叉污染。

为了使实验室样品与预先确定的几何条件(样品容器)相配合, 将样品切碎,直到他们的粒度大小相对于容器大小足够小。可选择用 杵和臼压碎、用刀和剪刀切碎、用粉碎机粉碎等。

为满足应急时效性要求,样品无需花较长的时间来进行干燥,浓度以每单位鲜(湿)重的活度表示,直接应用于与操作干预水平(OILs) 值的比较。

样品的测量方面,γ能谱仪能量范围通常为(50~2000)keV。

探测器效率作为γ核素测量技术测量结果的基准和影响测量结果 关键因素之一,应急监测中尤为重要。在进行样品测量之前,原则上 应事先做好谱仪的能量刻度和效率刻度,推荐程序沿用常规条件下实 验室γ能谱仪刻度的通用方法。

鉴于应急监测的突发性和测量结果时效性要求,针对应急监测中 未效率刻度谱仪,推荐了快速刻度方法:对于一台探测器(如 Ge 或 NaI),用已知活度的源(如常见的 KCl 粉末中 ⁴⁰K 确定γ能谱中 1460 keV 能量的效率值),依据与探测器类型相同(如 Ge 或 NaI)的随机 效率曲线作基础,平移至该点,得出应急状态下未刻度谱仪系统的效 率曲线。但该方法涉及的快速效率刻度曲线仅区别于探测器类型,鉴 于同一类型探测器效率因探测器晶体尺寸不同而曲线走势差异较大, 因此,仅以探测器类型为依据来确定效率具有很大的随机性和不确定 性,而且依靠一个能量的效率点将随机的效率曲线作平移,由此得到 的快速效率刻度偏差会更大,且该方法未对由此引入的不确定度进行 评估,直接应用该方法势必会给监测结果带来很大且难于量化的不确 定度。因此,应急监测中对未刻度γ能谱仪的快速刻度方法仍有待进 一步优化。

该出版物同时推荐:由于低活度样品确定的测量几何条件不适合 于高活度样品,因此,需要确定各种不同的探测器与样品的几何位置, 为应急监测中更宽活度范围的样品提供更大的灵活性。推荐盛放制备 样品的样品容器放到预先确定的位置,设置测量时间,开始获取能谱 数据。可通过探测系统测量时的死时间判断(是否超过10%),将样 品容器放到另一个预先确定的(较高)位置。

3.2.2 日本相关规范情况

日本作为核电发达国家,在应急监测γ核素测量技术规范的成功 经验也值得借鉴。2004年日本文部科学省发布了专门针对应急监测γ 核素的测量技术规范——《紧急时γ能谱分析法》(《No.29 緊急時に おけるカ 、ンマ線スへ 。クトル解析法》),2018年原子力规制委员 会对该规范进行了更新。

该标准推荐了针对代表性的相对效率为15%的 HPGe 探测器,不同环境介质在事先预设的代表性容器(2L 马林杯和圆柱形样品盒(φ50mm×50mm)),不同测量时间与探测限的关系(如表2、表3所示);对应急时涉及的大气颗粒物、土壤、饮用水、生物、沉降灰等典型环境介质规范了测量和分析要求,在附录中还列出了应急监测中实用数据库。

人居夕 获	样品量	I-131					C	s-137		苗侍
11 顶石称		10min	30min	1h	10h	10min	30min	1h	10h	- 単位
土壤	2kg	18	10	8	4	40	24	16	6	Bq/kg

表 2 紧急时样品量为 2L 马林杯条件下测量时间和探测限的关系

饮用水	2L	18	10	8	4	40	24	16	6	Bq/L
叶菜	1kg	36	20	16	8	80	48	31	12	Bq/kg, 生
海藻类	2kg	18	10	8	4	40	24	16	6	Bq/kg, 生
海水	2L	18	10	8	4	40	24	16	6	Bq/L
肉类	2kg	18	10	8	4	40	24	16	6	Bq/kg, 生

注: 半导体探测器相对效率为15%。

表3 紧急时样品量在圆柱形样品盒(50mmФ×50mm)条件下测量时间和探测限的关系

众压力 获	送口書	I-131					Cs-	137		畄 ↔	
「川川石柳	竹田里	10min	30min	1h	10h	10min	30min	1h	10h		
	1 m ³	10	6	4	2	18	10	8	4	Bq/m ³	
气溶胶	10 m ³	1	0.6	0.4	0.2	1.8	1	0.8	0.4	Bq/m ³	
	1000 m ³	0.01	0.006	0.004	0.002	0.018	0.01	0.008	0.004	Bq/m ³	
土壤	100g	220	140	100	40	500	300	200	80	Bq/kg	
饮用水	100 ml	220	140	100	40	500	300	200	80	Bq/L	
叶菜	50g	440	280	200	80	1000	600	400	160	Bq/kg 生	
海藻	100g	220	140	100	40	500	300	200	80	Bq/kg 生	
海水	100ml	220	140	100	40	500	300	200	80	Bq/L	
肉类	100g	220	140	100	40	500	300	200	80	Bq/kg 生	

注: 半导体探测器相对效率为15%。

3.2.3 美国标准情况

2012 年, 美国材料实验协会 (American Society of Testing Materials, ASTM)发布《利用γ谱仪快速测量环境介质中γ发射体标准规程》 (Standard Practice for the Rapid Assessment of Gamma-ray Emitting Radionuclides in Environmental Media by Gamma Spectrometry, ASTM D7784-12)。

该标准适用于使用高分辨的γ能谱仪测定通过简单制备的水、土 壤、蔬菜、食物等环境介质样品中的γ核素,旨在快速分析,不必过 于致力于通过繁琐的过程以确保均匀性或理想的测量条件。

对于固体样品,应通过研磨、过筛、或其它处理,旨在减少体积、 确保均匀和与刻度标准一致。探测限取决于样品尺寸、样品形状、探 测系统。

在探测器效率刻度方面,该标准通常使用可以溯源至国家标准机 构的标准物质建立经验的γ能谱效率刻度,要求标准物质与测量样品 在样品容器、密度、组分等方面尽可能的接近。很多情况下,可以通 过数学模型或外推法修正效率曲线至另外的几何条件,只有测量的质 量目标允许,仅需要考虑由此引入的不确定度。另外,该标准列出了 主要核素库,给出了统一的活度浓度和不确定度的计算方法。

3.3 国内γ核素测量技术相关标准情况

目前,我国γ能谱测量技术方面的现有标准均为一般实验室条件 下开展的γ核素的分析方法,主要包括:

(1)《高纯锗γ能谱分析通用方法》(GB/T 11713-2015)

(2)《土壤中放射性核素的y能谱分析方法》(GB/T 11743-2013)

(3) 《水中放射性核素的γ能谱分析方法》(GB/T 16140 - 2018)

(4)《生物样品中放射性核素的γ能谱分析方法》(GB/T16145-1995)

(5)《空气中放射性核素的γ能谱分析方法》(WS/T184-2017)

上述标准, 主要针对实验室条件下常规样品的高准度γ核素的测 定, 通常γ核素活度为环境级水平、无需对样品来源进行初筛, 报告 结果时效性要求不高, 对样品的前处理采用常规的制备方式 (如生物 样品需烧灰制样、淡水蒸干测量残渣、土壤烘干和研磨并过筛等), 土壤样品需放置一段时间待相关核素母子体放射性平衡后再测量, 为 获取感兴趣峰较好的统计不确定度测量时间通常需要一天到几天不 等, 因此, 这些常规样品测量标准前处理、分析流程较长, 一个样品 从送样到得到测量结果通常需要一天到几十天不等, 实效性要求不 高, 且处理流程较复杂, 没有结合应急监测样品的特点, 不能完全满 足应急监测的要求。

2018年,国家卫生健康委员会发布的《应急情况下放射性核素的γ能谱快速分析方法》(WS/T 614-2018),原则上对应急情况下样品

— 137 —

的放射性核素γ能谱仪快速分析方法进行了一定程度的规范,但未对 应急监测中面临的样品来源不明且活度差异大情况、未刻度谱仪快速 刻度方法、数据报送要求等相关技术内容进行规范。

4 标准制修订的基本原则和技术路线

4.1 基本原则

本标准主要针对应急监测中实验室γ核素测量涉及的样品来源复 杂、活度差异性大,数据结果报送时效性要求高,处理、测量操作规 范,测量结果准确可靠等特点,结合国内外现行标准、规范及相关文 献,编制注重标准化、实用性和操作性强的标准,以规范应急监测中 γ核素测量技术。

应急监测中环境样品γ核素测量技术规范的测量原理是:针对应 急监测中气溶胶、土壤、水、生物等四类典型环境介质,经样品初筛 分类后,将样品制成规则的几何形状,置于γ能谱仪探测器适当几何 位置,获取样品γ谱并确定全能峰位置和净峰面积,根据γ能谱仪能量 刻度系数、效率刻度系数、γ射线发射几率、样品质量(或体积等相 关参数确定样品中含有的放射性核素种类和活度浓度。

4.2 技术路线

本工作针对核与辐射应急监测的特点,针对气溶胶、土壤、水、 生物等四类典型环境介质,通过文献调研、模拟计算和实验验证相结 合的方法,制定样品初筛、样品制备、样品测量、样品分析、测量结 果表示等工作规范。

拟开展的技术路线主要如下:

(1)确定应急监测对实验室γ核素测量的需求。通过文献调研, 结合核与辐射应急监测的特点,尤其是核事故应急早、中期对γ核素

— 138 —

测量的需求,确定γ核素测量方法的活度范围、测量时间、探测限、 不确定度水平,用于全面指导本标准的编制。

(2) 探测器和环境介质的选择。本标准围绕目前核与辐射应急监测中常用 HPGe 谱仪涉及的两种类型探测器 (P型、N型),针对操作干预水平 (OILs) 和应急监测中涉及的水、生物、气溶胶、土壤等四种代表性环境介质,开展标准的制定工作。

(3)样品初筛方法的确定。针对应急中样品来源复杂性,活度 差异较大等特点,选择用简单易行的剂量率测量方法进行样品初筛, 分辨待测样品是否受污染或受污染的程度,根据样品测量结果判断是 否在环境本底涨落水平,将待测样品分为 I级(在环境本底涨落水平) 和 II级(明显高于环境本底涨落水平),兼顾指导后续γ能谱测量几何 位置的确定。

(4) 样品制备及测量。对于样品初筛结果,分类进行样品制备 和测量,其中测量几何依据样品初筛结果和探测系统的测量能力确 定。

(5) 典型探测器快速效率刻度方法。探测器效率作为γ核素测量 技术测量结果的基准和影响测量结果关键因素之一,在应急监测中尤 为重要。在应急准备阶段,应事先对每一台探测器可能涉及的典型样 品及测量几何进行能量刻度和实验效率刻度,相关原理、方法可参见 相关国标。本工作重点考虑在应急监测时,对未事先刻度的γ能谱仪, 根据其探测效率处在不同的范围(与探测器尺寸有关,表征为探测器 相对效率),建立快速效率刻度方程及转换系数,对系列探测器针对 4 种典型环境介质样品在代表性测量几何条件下进行快速、简便的效 率刻度。

另外,针对超过γ能谱仪探测器测量能力的较高活度样品,可通

过减少样品量进行测量,本标准给出了两种类型代表性探测器,土壤、 水、生物三种介质在样品量不足装(盛)满整个样品盒时,在不同几 何位置下不同体积样品的效率推荐值。

标准对典型探测器快速效率刻度方法的不确定度进行评估。

(6)不确定度的评定。依据通用的不确定度评定方法,结合应 急特点,注重可操作性,针对主要评定项,由实际结果确定不确定度 分量或估值,以便于对测量结果不确定度进行评定。

(7)编制待查核素库。在标准附录中给出应急监测中γ核素的典型、实用的待查核素库。

(8) 编制标准文本。文本编制贯穿标准编制工作的全过程,根据调研、计算、实验的进展及时更新,修改完善。

5 标准主要技术内容

5.1 应急监测中γ分析方法要求的确定

鉴于核与辐射事故应急的紧迫性,尤其是事故早、中期,可能面 临大量的各类环境介质γ核素分析任务,需要尽可能快速、规范、准 确可靠的获取第一手γ核素监测数据,因此,可无需复杂的样品制备 过程,且往往可通过牺牲一定的准确性来快速获取测量结果,为应急 决策和公众舆情应对提供第一手重要的核素分析数据。

结合应急监测的样品来源复杂,对γ核素数据的时效性、探测限、 样品活度的要求,确定样品的初筛、制备、测量、分析和报告的相关 技术要求,用于指导标准编制工作,涉及内容融入至标准编制全过程。

5.2 样品的初筛

应急监测中,鉴于样品来源的多样性,且可能面临不同程度的污染样品。由于核与辐射事故源项的不确定性, y核素种类或来自于以

单核素为主的辐射事故,或来自于核事故释放的多γ核素。由于不同 介质的样品可能污染程度不一致,如样品无污染或污染程度较轻,可 定义为 I 级水平样品;如样品来自于较高程度的污染,可归类为 II 级水平样品。因此,在应急样品制备和测量前,应考虑样品的初筛步 骤,旨在分辨待测样品是否受污染或受污染的程度,兼顾指导后续γ 能谱测量几何位置的确定。

对于大气、土壤、水、生物等四类介质样品,为分辨其是否为环 境本底水平或受污染程度,选择简单、快速、易操作的γ剂量率仪测 量(γ剂量率仪通常作为实验室常备的便携式仪器,价格相对便宜且 易操作,可实现对各类介质样品γ剂量率水平的快速准确测定),作为 样品初筛的项目。

为防止样品交叉污染且使得初筛过程简单易操作,所有应急样品 在待筛查前均当受污染样品管理。初筛时,将大气、土壤、水、生物 等待筛查样品置于圆柱形样品盒中(其中气溶胶样品叠成固定形状, 土壤、生物样品压实,水样品防止溢撒),放置于剂量率仪探测器正 下方尽可能近的距离进行剂量率水平测量。根据测量结果判断是否在 环境本底涨落水平,将待测样品分为Ⅰ级(在环境本底涨落水平)和 Ⅱ级(明显高于环境本底涨落水平)。

5.3 样品制备及测量

待测样品经初筛,确定为 I 级的测量样品,样品的制备和常规样 品制备的环境控制一致。对于 I 级样品,根据介质的类别,分为大气、 土壤、水、生物四类介质来进行样品制备和测量。其中土壤的 I 级测 量样品沿用样品初筛制备的样品。气溶胶的 I 级测量样品,压制成饼 状(圆柱体),超大流量气溶胶压制成样品尺寸为φ70×15mm,大流 量气溶胶压制成样品尺寸为φ50×6mm,装入样品盒底部;如果受时 间和测量系统限制,可将若干压制成同一尺寸的圆柱体样品叠加起来 进行批量测量,得到紧急状态批量样品测量数据,测量结果如有异常, 需进一步分析和测量,如无异常可进行另外批次样品的测量。对于水 的 I 级测量样品,将样品转移至 2L 马林杯,盛满、盖紧。对于生物 的 I 级测量样品,将样品切成约 1cm 小段,转移至 2L 马林杯,装满、 压实、盖紧。

对于II级待测样品,鉴于其活度水平相对较高,如进一步通过常 规实验室的方法进行制备容易造成交叉污染,测量时仍沿用原样品初 筛时的圆柱形样品盒,可在较短时间得到较满意的测量结果。即土壤 沿用样品初筛制备的样品;气溶胶的超大流量气溶胶、大流量气溶胶 均沿用样品初筛制备的圆柱形样品;水沿用样品初筛制备的圆柱形样 品;生物沿用样品初筛制备的圆柱形样品。

土壤、水、生物样称重并记录样品信息,记录样品信息分别见标 准 GB/T 11743 、GB/T 16140 和 GB/T 16145 要求; 气溶胶样品信息 及采样修正,见标准 WS/T 184。

测量前,首先检查测量样品盒外观是否完好,用酒精将表面擦拭 干净;如有破损需重新装样。为了防止探测器受到污染,用聚乙烯袋 或膜将测量样品包裹。

将测量样品放置于探测器垂直上方适当几何位置测量时,样品的 测量几何位置应与得到效率曲线的几何位置一致。其中 I 级测量样品 放置于高纯锗γ谱仪探测器 Omm 位置进行测量。对于 II 级测量样品, 根据剂量率水平和γ能谱仪探测器的探测能力(如死时间和峰形畸变 等的容纳能力),将样品放置于γ能谱仪探测器垂直上方适当测量高 度;如样品剂量率水平异常(高出环境本底数十倍,因核素不同而有 差异),超过γ能谱仪探测器测量能力,可通过减少样品量或采用其他 γ核素监测手段进行测量。

样品测量时间依据应急监测中γ核素测量目的,测量时间视样品 中放射性强弱和对测量结果的不确定度要求而定,一般测量时间为数 分钟~数小时,附录C给出了应急监测中γ核素测量时间和探测下限的 关系。

样品测量的一般步骤和方法见标准 GB/T 11713、GB/T 16140 、 GB/T 16145 和 WS/T 184。测量完毕后,样品应妥善管理。

5.4 谱仪刻度

在应急准备阶段,应事先对每一台探测器可能涉及的典型样品及 测量几何进行能量刻度和实验效率刻度,实验室条件下的能量刻度和 效率刻度的一般方法和程序见标准 GB/T 11713。如果待测样品或待 测核素没有相应的标准物质,可以选择无源效率刻度得到探测效率。 无源效率刻度需要探测器相关尺寸,结合蒙特卡罗等方法进行模拟计 算,需对得到的效率刻度结果不确定进行评估,无源效率刻度得到的 效率曲线引入不确定度相对较大。

为满足核与辐射事故应急监测工作的需要,针对未事先刻度的γ 能谱仪,面向大气、土壤、水、生物四类典型环境介质样品,本标准 推荐了通用类型γ能谱仪典型效率的快速效率方程和数据库,可实现 谱仪的快速、简便的效率刻度,并评定引入的不确定度,详见附录 A。 同时针对超过γ能谱仪探测器测量能力的较高活度样品,可通过减少 样品量进行测量, 附录 A 也给出了对 P 型和 N 型的四种代表性样品 在不同样品量条件下的效率方程,其它等级探测器效率方程可通过相 关比例关系进行转换。 针对核与辐射应急监测可能遇到的核素众多(数十种),相对比较法难以覆盖全核素刻度,因此,本标准推荐使用效率曲线法进行刻度,且能量侧重于200 keV 以上能量。

目前, 生态环保系统实验室用于应急监测的γ能谱仪绝大多数来 自于 Canberra 和 Ortec 两个生产厂家的同轴型探测器, 分为 N 型、P 型两种类型。本标准面向大气、土壤、水、生物等四类代表性环境介 质, 在标准附录 A 中给出 4 类代表性环境介质的标准尺寸(马林杯 或样品盒)对 N 型、P 型两种类型的几种典型效率 HPGe 探测器在 0、 20、40、80、120mm 等 5 个不同几何下的推荐效率曲线。

典型探测器确定:通过对全国环保系统现有的 HPGe 谱仪进行调研,选择 9 种典型探测器效率,包括 P 型 4 种,相对效率分别为 40%、50%、60%和 70%; N 型 5 种,相对效率分别为 30%、40%、50%、60%和 70%

对于生物样品的选择,鉴于核与辐射事故的早中期,蔬菜类的叶菜是最优先关注的生物样品,本工作的快速刻度数据库,选择菠菜、 白菜两种叶菜进行相关计算和实验验证,给出了以叶菜为代表的生物 样品的推荐效率刻度方法和数据库。

另外,针对超过γ能谱仪探测器测量能力的较高活度样品,可通 过减少样品量进行测量,本标准附录 A 分别给出了相对效率为 40% 的两种类型探测器 (P型和 N型),土壤、水、生物三种介质在样品 量不足装(盛)满整个样品盒时,在不同几何位置下不同体积样品的 效率推荐值。其它相对效率水平探测器的快速效率曲线及对应转换系 数可通过同一类型各范围探测器间的效率间关系进行相应修正得到。

引用推荐效率及换算系数时,应对其引入的不确定度进行评估。 经对系列探测器实验验证结果进行验证(详见验证报告),推荐0mm 效率曲线引入的不确定度小于 50%,其它几何条件下引入的不确定度 小于 60%。另外,如果探测器相对效率介入推荐效率曲线两者之间, 可用内插等方法进行适当修正,以减少引入的不确定度。

5.5 不确定度的评定

本标准为规范数据报送格式,突出简单实用可操作,定量分析结 果中,感兴趣核素活度浓度和不确定度,未测出感兴趣核素应标明小 于探测限并给出探测下限。其中不确定度的评定,借助通用的评定方 法,并注重应急特点及可操作性,对于主要评定步骤,由实际结果给 出不确定度分量的估值,如效率刻度曲线、统计不确定度等,最终给 出总的结果分析不确定度的估值。

具体操作步骤如下:(1)给出不确定度评定步骤;(2)分析不确 定度来源,建立γ谱活度测量数学模型;(3)给出主要不确定度分量 评定公式及说明;(4)推导不确定度合成公式,给出各分量灵敏系数; (5)给出扩展不确定度的表示方法;(6)规范测量结果报告格式。

5.6 核素库

γ能谱测定放射性核素是依据核素数据库的能量、半衰期、分支 比等核参数计算完成的。虽然仪器生产厂家一般对γ谱仪系统都配有 核素数据库,但这些核素库数据虽多但缺少针对性、实用性,核素的 能量相互干扰因素大。本标准结合应急监测的特点,参考了文献《实 验室γ能谱测量与分析》(李君利主编,北京:人民交通出版社,2014), 给出的实用核素库,附录D列出了应急监测中不同类型核与辐射事故 的常见γ核素库,其中表1为核事件特征γ核素数据库,表2-表7分别 为6种核事件核素参数库,即空爆核试验特征放射性核素参数库、地 爆核试验特征放射性核素参数库、反应堆核事故特征放射性核素参数 库、核燃料后处理长释放的特征放射性核素参数库、医用核素释放的特征放射性核素参数库和辐射事故释放的特征放射性核素参数库。

同时,参考日本发布的《紧急时γ能谱分析法》,附录E列出了核 裂变后不同阶段测量样品得到的γ能谱,即结合核素种类、γ发射率及 探测器探测效率等因素,应急监测中γ能谱仪在不同时期将可能测到 感兴趣峰。

6 与国内外同类标准或技术法规的水平对比和分析

本标准为新制定标准,引入了 IAEA 和日本福岛事故后最新的应 急监测思想,同时参考了 IAEA、美国、日本最新的相关技术标准, 结合核与辐射事故应急监测工作特点,制定适用应急工作要求的环境 样品γ核素测量技术规范,以有效提升各级辐射环境监测机构的应急 监测技术能力,保障公众健康,保护环境安全,在国外适用应急监测 中环境样品γ核素测量方面具有较强的实用性、规范性和先进性。

7 参考文献

1. International Atomic Energy Agency(IAEA), Criteria for use in preparedness and response for a nuclear or radiological emergency, No. GSG 2, 2011.

2. International Atomic Energy Agency(IAEA), Action to protect the public in an emergency due to severe conditions at a light water reactor, EPR-NPP public protections, 2013.

3. International Atomic Energy Agency(IAEA), Generic procedures for monitoring in a nuclear or radiological emergency,IAEA TECDOC 1092, 1999.

4. 日本文部科学省,緊急時におけるガンマ線スペクトル解析法, No.29, 2004. 5. 原子力规制委员会,緊急時におけるゲルマニウム半導体検出器 によるy線スペクトル解析法, No.29, 2018.

 李君利主编,实验室γ能谱测量与分析,北京,人民交通出版社, 2014。

7. 国家标准,高纯锗γ能谱分析通用方法(GB/T11713-2015),国家 质量监督检验检疫总局、国家标准化管理委员会发布,2015。

 8. 国家标准, 土壤中放射性核素的γ能谱分析方法(GB/T 11743-2013), 国家质量监督检验检疫总局、国家标准化管理委员会 发布, 2013。

9. 国家标准,水中放射性核素的γ能谱分析方法(GB/T 16140-2018), 国家质量监督检验检疫总局、国家标准化管理委员会发布,2018。

10. 国家标准,生物样品中放射性核素的γ能谱分析方法(GB/T 16145-1995),国家技术监督局、中华人民共和国卫生部发布,1995。
11. 卫生行业标准,空气中放射性核素的γ能谱分析方法(WS/T

184-2017),国家卫生和计划生育委员会发布,2017。

12. 卫生行业标准,应急情况下放射性核素的γ能谱快速分析方法 (WS/T 614-2018),国家卫生健康委员会发布,2018。

附:实验验证报告

快速效率方程计算结果相关实验验证报告

为验证标准快速刻度方法及数据库的准确性,评估其不确定度, 本工作针对不同介质标准物质,采用系列探测器对探测器上方 0mm 及不同高度处的效率方程计算值与实测效率进行比较,相关结果分别 见表 1 和表 2。同时邀请生态环境系统 6 家省级辐射环境监测机构作 为本标准的验证单位,即黑龙江省辐射环境监督站、上海市辐射环境 监督站、山东省核与辐射环境管理中心、广东省环境辐射监测中心、 广西壮族自治区辐射环境监督管理站和四川省辐射环境管理监测中 心站,针对土壤、气溶胶及水等 3 种环境介质的标准物质,对探测器 上方 0mm 处的实测效率与效率方程计算效率进行比较,结果见表 3。

以上验证结果表明,针对土壤、水和气溶胶等3种不同介质标准物质,本标准效率方程计算方法对探测器上方0mm及不同高度处的效率计算结果具有可行性,经评估并作保守估算,对探测器上方0mm 处的计算效率刻度的引入不确定为50%,不同高度处通过效率方程计算结果引入不确定度为60%。

快速效率刻度方程验证结果

表1 探测器上方 0mm 处不同介质标准物质实测效率与效率方程计算效率比较

		探测器			φ7()×65mm 土壤源		φ7	70×65mm 水源		φ70×15mn	n 气溶胶(超大流	量)
序号	探测器相对 效率	实测效 率	探测器类型	厂商	实测效率	效率方程计算 效率	偏差	实测效率	效率方程计算 效率	偏差	实测效率	效率方程计算 效率	偏差
1		46.4%	N 型	Canberra	1.36E-02	1.67E-02	23%	1.43E-02	1.78E-02	24%	3.52E-02	3.22E-02	9%
2		45.4%	N 型	Canberra	1.35E-02	1.67E-02	23%	1.43E-02	1.78E-02	24%	3.55E-02	3.22E-02	9%
3		47.1%	N 型	Canberra				1.43E-02	1.78E-02	24%			
4		42.1%	N 型	Canberra	1.30E-02	1.67E-02	28%				3.03E-02	3.22E-02	-6%
5	≥40%	45.7%	N 型	Canberra	1.37E-02	1.67E-02	22%	1.37E-02	1.78E-02	30%	3.30E-02	3.22E-02	2%
6		42.8%	N 型	ORTEC	1.36E-02	1.67E-02	23%						
7		44.6%	N 型	Canberra	1.57E-02	1.67E-02	7%	2.06E-02	1.78E-02	-14%			
8		45.1%	P 型	Canberra	1.37E-02	1.53E-02	12%	1.51E-02	1.63E-02	8%			
9		44.4%	P 型	ORTEC	1.38E-02	1.53E-02	12%	1.41E-02	1.63E-02	16%	3.31E-02	2.95E-02	11%
10		44.8%	P 型	ORTEC	1.29E-02	1.53E-02	19%	1.38E-02	1.63E-02	18%	2.82E-02	2.95E-02	-5%
		最大偏	差				28%			30%			11%
11		55.5%	P 型	ORTEC	1.37E-02	1.49E-02	9%	1.40E-02	1.57E-02	13%	3.16E-02	2.85E-02	10%
12	≥50%	56.1%	P 型	ORTEC	1.51E-02	1.49E-02	-1%	1.55E-02	1.57E-02	2%	3.45E-02	2.85E-02	17%
13		54.2%	P 型	ORTEC	1.41E-02	1.49E-02	6%	1.50E-02	1.57E-02	5%	3.37E-02	2.85E-02	15%
		最大偏	差				9%			13%			17%

		探测 哭			φ50×6m	m 气溶胶(大流量	t)	:	2L 马林杯水	
序号	探测器相对 效率	实测效 率	探测器类型	厂商	实测效率	效率方程计算 效率	偏差	实测效率	效率方程计算 效率	偏差
1		46.4%	N 型	Canberra	4.79E-02	5.80E-02	21%	1.50E-02	9.56E-03	36%
2		45.4%	N 型	Canberra	4.13E-02	5.80E-02	41%	1.12E-02	9.56E-03	15%
3		47.1%	N 型	Canberra				1.13E-02	9.56E-03	16%
4		42.1% N 型		Canberra	4.20E-02	5.80E-02	38%	1.04E-02	9.56E-03	8%
5	>409/	45.7%	N 型	Canberra	4.42E-02	5.80E-02	31%	1.09E-02	9.56E-03	12%
6	≥40%	42.8%	N 型	ORTEC	4.59E-02	5.80E-02	26%	1.02E-02	9.56E-03	6%
7		44.6%	N 型	Canberra						
8		45.1%	P 型	Canberra	4.97E-02	5.25E-02	6%	9.78E-03	1.18E-02	21%
9		44.4%	P 型	ORTEC				1.16E-02	1.18E-02	2%
10		44.8%	P 型	ORTEC				1.38E-02	1.18E-02	-14%
	_	最大	、偏差				41%			36%
11		55.5%	P 型	ORTEC	4.01E-02	5.09E-02	27%	1.11E-02	1.24E-02	12%
12	≥50% 56.1%		P 型	ORTEC	4.57E-02	5.09E-02	11%	1.21E-02	1.24E-02	3%
13		54.2%	P 型	ORTEC	4.18E-02	5.09E-02	22%	1.18E-02	1.24E-02	4%
		最大	、 偏差				27%			12%

表1探测器上方0mm处不同介质标准物质实测效率与效率方程计算效率比较(续)

行准的后世沿	样品尺寸(mm)	m) 探测器			20mm			40mm			80mm	_	120mm		
协 在初 <u>版</u> 抽还		类型	相对效率	实验效率	模拟效率	偏差									
土壤	φ70×65			1.01E-02	1.08E-02	6.4%	6.50E-03	6.92E-03	6.5%	3.33E-03	3.51E-03	5.5%	1.93E-03	2.11E-03	9.3%
水	φ70×65	D #I	46.4%,	9.72E-03	1.13E-02	16.6%	6.41E-03	7.29E-03	13.6%	2.92E-03	3.70E-03	26.8%			
气溶胶(超大流量)	φ70×15	PÆ		1.99E-02	1.91E-02	-3.8%	1.20E-02	1.18E-02	-1.5%	5.61E-03	5.73E-03	2.2%	3.20E-03	3.39E-03	6.1%
气溶胶 (大流量)	φ50×6			2.37E-02	2.79E-02	17.5%	1.35E-02	1.58E-02	17.3%	6.03E-03	6.96E-03	15.4%	3.37E-03	3.86E-03	14.6%
土壤	φ70×65			8.40E-03	9.62E-03	14.6%	5.42E-03	6.11E-03	12.8%	2.75E-03	3.06E-03	11.3%	1.67E-03	1.83E-03	9.7%
水	φ70×65	NT #1	56 100/	8.30E-03	1.00E-02	20.5%	5.52E-03	6.31E-03	14.4%	2.81E-03	3.21E-03	14.3%	1.62E-03	1.94E-03	19.7%
气溶胶(超大流量)	φ70×15	N 空	30.10%	1.77E-02	1.70E-02	-4.0%	1.03E-02	1.04E-02	0.9%	4.78E-03	4.95E-03	3.7%	2.69E-03	2.92E-03	8.5%
气溶胶 (大流量)	φ50×6			2.15E-02	2.51E-02	16.7%	1.19E-02	1.39E-02	17.0%	5.17E-03	6.04E-03	16.9%	2.85E-03	3.32E-03	16.5%
	·····································					20.5%			17.3%			26.8%			19.7%

表 2 不同类型探测器上方不同几何下标准物质实测效率与效率方程计算效率比较

表 3 六家验证单位对探测器上方 0mm 处针对不同介质标准物质实测效率与效率方程计算效率比较

行准枷手入手米刑	样品尺寸 (mm)	首位它只	松测留米型	您测恩相对效率	·····································							
林祖初與升與关至	作而八寸(mm)	甲位 伊 写	苏树市大主	1/1/0/10/1/0/1/2/-	依据附录 D 所得测量值	标准值1	偏差	标准值 2	偏差	标准值 3	偏差	
		1	P 型	40%	3.832	4.64	17.4%	5.31	27.8%	5.00	23.4%	
		2	P 型	40%	6.008	4.64	-29.6%	5.31	-13.2%	5.00	-20.2%	
十壇	<i>a</i> 70×65mm	3	P 型	40%	5.307	4.64	-14.4%	5.31	prod prod 27.8% -13.2% 0.0% 13.4%	5.00	-6.1%	
上埃	φ/0×031111	4	N 型	70%	4.597	4.64	0.9%	5.31		5.00	8.1%	
		5	P 型	35%	3.945	4.64	14.9%	5.31	25.7%	5.00	21.1%	
		6	P 型	44%	4.135	4.64	10.8%	5.31				

七准枷氏人氏米刑		首任应日	松阳岛米田	松涧现也对苏本			Cs-137	7				
林准初质介质关型	件前尺寸 (mm)	単位庁亏	休测奋尖望	体测益相对效率	依据附录 D 所得测量值	标准值1	偏差	标准值 2	偏差	标准值 3	偏差	
		1	P 型	40%	813.833	858.47	5.2%	1062.03	23.4%	1000.00	18.6%	
		2	P 型	40%	1038.333	858.47	-21.0%	1062.03	2.2%	1000.00	-3.8%	
「「「「「「」」」(「「」」(「」」)(「」」)(「」」)(「」」)(「」」)	a50×6mm	3	P 型	40%	939.167	858.47	-9.4%	1062.03	11.6%	1000.00	6.1%	
【沿放(八抓里)	φ30×01111	4	N 型	70%	915.167	858.47	-6.6%	1062.03	13.8%	1000.00	8.5%	
		5	P 型	35%	813.333	858.47	5.3%	1062.03	23.4%	1000.00	18.7%	
		6	N 型	46%	631.000	858.47	26.5%	1062.03	40.6%	1000.00	36.9%	
		1	N 型	60%	0.359	0.41	11.3%	0.51	29.5%	0.50	28.2%	
		2	P 型	40%	0.537	0.41	-32.6%	0.51	-5.4%	0.50	-7.4%	
水 (φ70×65mm	3	P 型	40%	0.432	0.41	-6.6%	0.51	15.3%	0.50	13.7%	
小 (我低拍度)		4	N 型	70%	0.387	0.41	4.4%	0.51	24.0%	0.50	22.6%	
		5	N 型	60%	0.311	0.41	23.4%	0.51	39.1%	0.50	37.9%	
		6										
			1	N 型	60%	3.713	3.67	-1.2%	4.75	21.9%	5.00	25.7%
		2	P 型	40%	3.450	3.67	6.0%	4.75	27.4%	5.00	31.0%	
★ (協喜活産)	<i>a</i> 70×65mm	3	P 型	40%	4.585	3.67	-25.0%	4.75	3.5%	5.00	8.3%	
小(权同伯反)	φ/0<031111	4	N 型	70%	3.943	3.67	-7.5%	4.75	17.0%	5.00	21.1%	
		5	N 型	60%	2.917	3.67	20.5%	4.75	38.6%	5.00	41.7%	
		6	N 型	46%	3.405	3.67	7.2%	4.75	28.3%	5.00	31.9%	
		1	P 型	40%	0.041	0.04	-5.0%	0.05	13.8%	0.04	-2.9%	
		2	P 型	40%	0.040	0.04	-1.8%	0.05	16.5%	0.04	0.3%	
水 (马林杯)	21 马林杯水	3	P 型	40%	0.040	0.04	-1.7%	0.05	16.6%	0.04	0.4%	
	2L -J 70 70 /1	4	N 型	70%	0.036	0.04	8.7%	0.05	25.0%	0.04	10.5%	
	-	5	N 型	60%	0.039	0.04	1.6%	0.05	19.2%	0.04	3.6%	
		6	N 型	46%	0.040	0.04	-1.7%	0.05	16.5%	0.04	0.4%	
				-32.60%		40.6%		41.7%				