

中华人民共和国卫生行业标准

WS/T 184—2017

代替 WS/T 184-1999

空气中放射性核素的 γ 能谱分析方法

Determination of radionuclides in air by gamma spectrometry

2017-10-27 发布

2018-05-01 实施

中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会发布

前 言

本标准按照 GB/T1.1-2009 给出的规则起草。

本标准代替 WS/T 184-1999《空气中放射性核素的 γ 能谱分析方法》。与 WS/T 184-1999 相比，除编辑性修改外主要技术变化如下：

- 修改了标准的“范围”（见第 1 章，1999 年版的第 1 章）；
- “引用标准”修改为“规范性引用文件”（见第 2 章，1999 年版的第 2 章）；
- “定义”修改为“术语和定义”（见第 3 章，1999 年版的第 3 章），删除了“工作场所和环境空气监测”和“呼吸带取样”（1999 年版的 3.1 和 3.4），修改了“气溶胶”、“空气取样器”、“呼吸带”和“个人空气取样器”（见 3.1、3.2、3.3 和 3.4，1999 年版的 3.6、3.2、3.3 和 3.5）；
- 删除了“方法概述”（见 1999 年版的第 4 章）；
- 删除了“仪器与设备”中“空气采样系统组成示意图”、“组合取样器示意图”以及滤料的相关内容（见 1999 年版的 5.1），“仪器与设备”修改为“材料与设备”（见第 4 章，1999 年版的第 5 章）；
- “滤料”修改为“过滤介质”（见 4.2，1999 年版的 5.1.2）；
- “采样方法”修改为“采样”，按监测类型分为“环境空气采样”、“工作场所空气采样”和“个人空气采样”（见第 5 章，1999 年版的第 6 章）；
- 修改了“最小采气量”（见 5.6，1999 年版的 6.7）；
- 删除了“采样效率的确定”（见 1999 年版的 6.9）；
- 修改了“谱仪刻度”（见第 6 章，1999 年版的第 7 章），增加了“无源效率刻度”（见第 6 章）；
- “测量与核素分析”修改为“测量与分析”（见第 7 章，1999 年版的第 8 章）；
- 修改了“空气放射性浓度的计算”和“衰变校正”（见第 7 章，1999 年版的 8.4 和 8.5）；
- 修改了“结果报告”（见第 8 章，1999 年版的第 9 章），增加了 A 类不确定度、B 类不确定度和扩展不确定度（见第 8 章）；
- 删除了附录 A、附录 B、附录 C 和附录 D（见 1999 年版的附录 A、附录 B、附录 C 和附录 D）。

本标准起草单位：国家卫生计生委核事故医学应急中心、中国疾病预防控制中心辐射防护与核安全医学所、黑龙江省疾病预防控制中心、山东省医学科学院放射医学研究所、新疆维吾尔疾病预防控制中心、北京市疾病预防控制中心、江苏省疾病预防控制中心。

本标准主要起草人：张庆、刘长安、徐翠华、拓飞、周强、张京、李文红、丁艳秋、袁龙、赵宇、李慧娟、孟庆华、扈鹏超、许家昂、杨小勇、余宁乐、王玉文、郝建梅。

空气中放射性核素的 γ 能谱分析方法

1 范围

本标准规定了高纯锗(HPGe) γ 能谱仪测定空气中 γ 放射性核素组成及其活度浓度的方法,Ge(Li)探测器和碘化钠探测器可参照本标准执行。

本标准适用于空气中放射性核素的 γ 能谱分析。

2 规范性引用文件

下列文件对于本文件的应用是必不可少的。凡是注日期的引用文件,仅注日期的版本适用于本文件。凡是不注日期的引用文件,其最新版本(包括所有的修改单)适用于本文件。

GB/T 11713—2015 高纯锗 γ 能谱分析通用方法

GB/T 11743—2013 土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法

3 术语和定义

下列术语和定义适用于本文件。

3.1

气溶胶 aerosol

固体或液体微粒物质在空气或其他气体介质中形成的气体分散体系。含有放射性核素的气溶胶称为放射性气溶胶。

3.2

空气取样器 air sampler

利用抽吸的方法把气溶胶微粒或气态碘等收集或阻留在过滤介质上的装置。

3.3

呼吸带 breathing zone

操作人员的口腔和鼻孔附近的区域。操作人员在完成规定任务的过程中,该处的空气经口和鼻吸入人体。

3.4

个人空气取样器 personal air sampler

工作人员个人佩带的空气取样器,用以得到有代表性的呼吸带的空气样品。

4 材料与设备

4.1 空气采样系统

空气采样系统主要包括空气取样器、流量测量与控制装置和抽气动力。

4.2 过滤介质

应根据取样目的和采集对象，选用合适的过滤介质。过滤介质的有效采样面积应与空气取样器采样窗面积相符。本文件推荐常用的三种用途的过滤介质：

- a) 超细玻璃纤维滤纸：用于采集气溶胶微粒；
- b) 活性炭滤纸：用于采集气态元素态碘和气溶胶微粒；
- c) 活性炭滤筒：用于采集气态有机碘化物。

4.3 流量测量与控制装置

流量测量与控制装置宜具有即时流量显示、流量调节和采集体积累积等功能，流量测量装置应经法定计量单位标定，精度应好于5%。

4.4 抽气动力

抽气动力应与流量控制装置联动实现流量调节和维持流量恒定功能。

4.5 样品盒

它用于装过滤介质样品供 γ 能谱仪直接测量，样品盒材质宜选用聚乙烯。

4.6 γ 能谱仪

HPGe γ 能谱仪是测定放射性物质 γ 射线能量的仪器，它由屏蔽室、探测器、电子学系统、计算机和输出打印等设备组成，其相关性能指标要求参见GB/T 11713-2015的第3章。 γ 能谱仪应按规定周期由法定计量部门检定。

5 采样

5.1 采样原则

根据监测类型分为环境空气采样、工作场所空气采样和个人空气采样。空气样品的采样位置、时间和采样数量要有代表性。

5.2 环境空气采样

环境空气采样指在核设施、辐射源或非密封源放射工作场所等边界外的环境中进行的空气采样，主要用于环境空气辐射水平的监测和控制。环境空气采样应按具体的辐射环境空气监测方案进行。空气的采样点应选择在周围没有树木、没有建筑物影响的开阔地，或在没有高大建筑物影响的建筑物的无遮盖平台上。在事故空气污染监测时，要特别注意采样的时效性和地理分布情况。

5.3 工作场所空气采样

工作场所空气采样指在核设施、辐射源或非密封源放射工作场所等边界内进行的空气采样，主要用于工作场所空气辐射水平的监测。在没有个人空气取样器的情况下，可用于吸入空气的内照射个人剂量

的估算。这时的采样点应设置在可能发生空气放射性污染的关键位置，通常采用固定点采样，其采样高度距地面1.5 m。

5.4 个人空气采样

对放射性工作人员吸入工作场所中放射性污染空气进行监测宜采用个人空气取样器进行采样。个人空气取样器应佩带在呼吸带相应的人体部位进行采样，其空气采样速率应与人的呼吸率近似，佩带的时间取决于污染核素的类型和空气中的放射性核素活度浓度水平。

5.5 采样信息记录

采样信息包括但不限于采样开始时间、结束时间、采样流量、采样现场温度和气压、采样位置及周围环境特征、采样人、样品编号等信息。

5.6 最小采样体积

最小采样体积视取样目的、预估空气放射性活度浓度及分析方法的探测下限而定。

5.7 空气采样体积

由式（1）得到采样状态下的采样体积 V_r ：

$$V_r = Q \times t \dots\dots\dots (1)$$

式中：

V_r ——采样状态下的采样体积，单位为立方米（ m^3 ）；

Q ——空气流量，单位为立方米每分（ m^3/min ）；

t ——采样时间，单位为分（min）。

5.8 空气采样体积修正

气压和温度会影响气体采样的体积，当采样位置温度低于 5℃或高于 35℃、大气压低于 98.8kPa 或高于 103.4 kPa 时，用式（2）将采集空气的体积修正为标准状态下的体积 V_0 ：

$$V_0 = V_r \times \frac{T_0 \times P}{T \times P_0} \dots\dots\dots (2)$$

式中：

V_0 ——标准状态下的气体体积，单位为立方米（ m^3 ）；

V_r ——采样状态下的气体体积，单位为立方米（ m^3 ）；

P ——采样时的大气压，单位为千帕（kPa）；

P_0 ——标准状态下的大气压， $P_0=101.3$ kPa；

T_0 ——标准状态下的空气绝对温度， $T_0=273.15^\circ\text{C}+20^\circ\text{C}$ ；

T ——采样状态下的空气绝对温度，采样时的摄氏温度值与 273.15 的和。

6 γ 能谱仪刻度

6.1 能量刻度

γ 能谱仪能量刻度需要有已知 γ 射线能量的刻度源, 其能量范围应能覆盖被检样品的 γ 射线能量, 一般取 40 keV~2 000 keV, 宜用于能量刻度的单能和多能核素见 GB/T 11713—2015 的附录 A。刻度方法见 GB/T 11713—2015 的 4.2。

6.2 有源效率刻度

γ 能谱仪有源效率刻度需要有已知放射性核素活度浓度的标准源, 该源的基质应与被测样品的材质、密度等特性相一致或相近。标准源中含有的放射性核素发射的 γ 射线能量宜在 40 keV~2 000 keV 范围, 宜用于效率刻度的单能和多能核素见 GB/T 11713—2015 的附录 A, 同时可添加天然放射性核素。刻度方法见 GB/T 11713—2015 的 4.3。

6.3 无源效率刻度

γ 能谱仪无源效率刻度仅针对完成无源效率刻度表征的探测器。利用无源效率刻度软件, 输入被测样品和样品盒的密度、材质、尺寸、与探测器距离等参数, 无源效率刻度软件自动完成 γ 能谱仪的效率刻度。

7 测量与分析

7.1 过滤介质本底测量

取同批干净过滤介质, 放于样品盒中加盖密封, 在与效率刻度相同的条件下测量, 测量时间一般不少于 24 h 或全能峰计数的统计涨落 $\leq 5\%$ 。

7.2 样品的测量

将采完样的过滤介质放于样品盒内, 在与效率刻度相同的条件下测量, 测量时间宜满足待测核素的最小全能峰计数的统计涨落 $\leq 5\%$ 。

7.3 核素的定性识别

准确的能量刻度是核素定性识别的基础, 依据 γ 全能峰中心道的能量对比核素库中的核素能量识别核素。核素识别时应注意剔除 γ 射线能量相近的干扰, 见 GB/T 11743—2013 的 7.4。

7.4 核素定量计算相对比较法

相对比较法适用于有待测核素标准源可利用情况下样品中放射性核素活度浓度的计算。

利用计算机解谱得到标准源和样品谱中各全能峰净面积。标准源中第 j 种核素的第 i 个全能峰的刻度系数 C_{ji} 见式 (3):

$$C_{ji} = \frac{A_j}{Net_{ji}} \dots\dots\dots (3)$$

式中:

C_{ji} ——标准源中第 j 种核素的第 i 个全能峰的刻度系数, 单位为贝可秒每计数 ($Bq \cdot s/\text{计数}$);

A_j ——标准源中第 j 种核素的活度, 单位为贝可 (Bq);

Net_{ji} ——标准源中第 j 种核素的第 i 个全能峰净面积计数率, 单位为计数每秒 (计数/s)。

被测样品中第 j 种核素的活度浓度 Q_j 见式 (4):

$$Q_j = \frac{C_{ji}(Net_{jis} - Net_{jib})}{V_0 EK_1 K_2} \dots\dots\dots (4)$$

式中:

- Q_j ——被测样品中第 j 种核素的活度浓度, 单位为贝可每立方米 (Bq/m^3);
- C_{ji} ——标准源中第 j 种核素的第 i 个全能峰的刻度系数, 单位为贝可秒每计数 ($Bq \cdot s/\text{计数}$);
- Net_{jis} ——被测样品第 j 种核素的第 i 个全能峰净面积计数率, 单位为计数每秒 (计数/s);
- Net_{jib} ——与 Net_{jis} 相对应的全能峰本底净面积计数率, 单位为计数每秒 (计数/s);
- V_0 ——被测样品标准状态下体积, 单位为立方米 (m^3);
- E ——过滤介质的捕集效率;
- K_1 ——样品采集时到样品测量时的衰变校正因子;
- K_2 ——样品测量过程中的衰变校正因子。

7.5 核素定量计算效率曲线法

效率曲线法适用于已有效率刻度曲线可利用情况下样品中放射性核素活度浓度的计算。

根据效率刻度后的效率曲线或效率曲线的拟合函数求出某特定能量 γ 射线所对应的效率值 η_{ji} , 被测样品中第 j 种核素的活度浓度 Q_j 见式 (5):

$$Q_j = \frac{Net_{jis} - Net_{jib}}{F_{ji} \eta_{ji} V_0 EK_1 K_2} \dots\dots\dots (5)$$

式中:

- Q_j ——被测样品中第 j 种核素的活度浓度, 单位为贝可每立方米 (Bq/m^3);
- η_{ji} ——第 j 种核素的第 i 个 γ 射线全能峰所对应的效率值;
- F_{ji} ——第 j 种核素发射第 i 个 γ 射线的发射概率;
- Net_{jis} ——被测样品第 j 种核素的第 i 个全能峰净面积计数率, 单位为计数每秒 (计数/s);
- Net_{jib} ——与 Net_{jis} 相对应的全能峰本底净面积计数率, 单位为计数每秒 (计数/s);
- V_0 ——被测样品标准状态下体积, 单位为立方米 (m^3);
- E ——过滤介质的捕集效率;
- K_1 ——样品采集时到样品测量时的衰变校正因子;
- K_2 ——样品测量过程中的衰变校正因子。

7.6 衰变校正

当采样时间、放置时间和测量时间大于待测核素的半衰期时, 应对核素在各时间间隔的衰变进行校正。样品采集时到样品测量时的校正见式 (6), 样品测量过程中的校正见式 (7):

$$K_1 = e^{-\frac{\ln(2) \times \Delta t}{T_{1/2}}} \dots\dots\dots (6)$$

式中:

- K_1 ——样品采集时到样品测量时的衰变校正因子;
- Δt ——样品采集时到样品测量时的时间差, 单位为秒 (s);
- $T_{1/2}$ ——核素半衰期, 单位为秒 (s)。

$$K_2 = \frac{T_{1/2}}{\ln(2) \times t_r} \times (1 - e^{-\frac{\ln(2) \times t_r}{T_{1/2}}}) \dots\dots\dots (7)$$

式中:

K_2 ——样品测量过程中的衰变校正因子;

t_r ——样品测量的实时间, 单位为秒 (s);

$T_{1/2}$ ——核素半衰期, 单位为秒 (s)。

8 结果报告

8.1 报告格式

结果报告内容应包括核素定量计算的结果和相应的扩展不确定度。

8.2 不确定度的评定方法

8.2.1 A 类不确定度

基于测量系列, 用统计分析法评定 A 类不确定度, γ 能谱分析的 A 类不确定度用式 (8) 评定:

$$\mu_A = \sqrt{\frac{N_s}{t_s^2} + \frac{N_b}{t_b^2}} \dots\dots\dots (8)$$

式中:

μ_A ——A 类不确定度;

N_s ——样品全能峰净面积计数;

N_b ——相应全能峰的本底净面积计数;

t_s ——样品测量活时间, 单位为秒 (s);

t_b ——本底测量活时间, 单位为秒 (s)。

8.2.2 B 类不确定度

γ 能谱分析的 B 类不确定度的来源如下:

- a) 样品峰面积本底修正引入的不确定度 (μ_{B1});
- b) 探测效率引入的不确定度 (μ_{B2});
- c) 自吸收校正引入的不确定度 (μ_{B3});
- d) 符合校正引入的不确定度 (μ_{B4});
- e) 发射概率校正引入的不确定度 (μ_{B5});
- f) 核素衰变校正引入的不确定度 (μ_{B6});
- g) 刻度源引入的不确定度 (μ_{B7});
- h) 体积校正引入的不确定度 (μ_{B8});
- i) 样品量引入的不确定度 (μ_{B9});
- j) γ 能谱仪测量死时间引入的不确定度 (μ_{B10}) 等。

上述 B 类不确定度中, 贡献较大的是样品峰面积本底修正引入的不确定度 (μ_{B1}), 探测效率引入的不确定度 (μ_{B2}), 自吸收校正引入的不确定度 (μ_{B3}), 符合校正引入的不确定度 (μ_{B4}) 和发射概率校正引入的不确定度 (μ_{B5})。 μ_{B1} 可由峰面积解谱软件得到。 μ_{B2} 由效率刻度过程中计算效率值时产生。当被测样品与刻度源的基质或密度差别较大以至于需做自吸收校正时, 自吸收校正计算过程中产生 μ_{B3} ,

若基质和密度的差别不需要做自吸收校正,则 μ_{B3} 取 1。当被测样品中含有的多能核素活度较高以至于需要做符合校正时,在符合校正计算过程中得到 μ_{B4} 。 μ_{B5} 可由核素数据手册查到,解谱软件核素库也会提供。其他对总的 B 类不确定度的贡献很小,一般可以不考虑,因此,总的 B 类不确定度可用式(9)计算:

$$\mu_B = \sqrt{\mu_{B1}^2 + \mu_{B2}^2 + \mu_{B3}^2 + \mu_{B4}^2 + \mu_{B5}^2} \quad (9)$$

式中:

μ_B

——总的B类不确定度;

μ_{B1} 、 μ_{B2} 、 μ_{B3} 、 μ_{B4} 、 μ_{B5} ——分别表示样品峰面积本底修正、探测效率、自吸收校正、符合校正和发射概率校正引入的不确定度。

8.2.3 扩展不确定度

分析结果的扩展不确定度 U 用式(10)评定:

$$U = k\sqrt{u_A^2 + u_B^2} \dots\dots\dots (10)$$

式中:

k ——包含因子,一般取 2,相应的置信度水平为 95%。

8.3 低于仪器测量探测下限的报告

当核素定量计算结果低于仪器探测下限时,结果表示为“小于探测下限”,探测下限的计算方法见 GB/T 11713-2015 附录 C。