

中华人民共和国国家职业卫生标准

GBZ/T 269—2016

尿样中总 α 和总 β 放射性检测规范

Specification for radioactivity testing of total α and total β in urine

2016-06-28 发布

2016-11-01 实施

中华人民共和国
国家卫生和计划生育委员会 发布

目 次

前言	III
1 范围	1
2 规范性引用文件	1
3 术语和定义	1
4 方法要点	2
5 化学试剂和设备	2
6 样品采集、处理和制备	3
7 尿的筛查水平	5
8 总 α 和总 β 的测量程序	6
9 测量数据的处理及结果报告	7
10 检测的质量控制	8
附录 A (规范性附录) 标准不确定度、判断阈和探测限的计算	9
参考文献	15

前 言

根据《中华人民共和国职业病防治法》制定本标准。

本标准按照 GB/T 1.1—2009 给出的规则起草。

本标准主要起草单位：中国医学科学院放射医学研究所、上海市肺科医院、四川省疾病预防控制中心。

本标准主要起草人：焦玲、丁艳秋、张文艺、武权、徐孝华、陈晓文、何玲、杨翊、张良安。

尿样中总 α 和总 β 放射性检测规范

1 范围

本标准规定了人尿中总 α 和总 β 放射性的检测方法及要求。
本标准适用于尿样中总 α 和总 β 的测定。

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 14883(所有部分) 食品中放射性物质检验

GB/T 27025—2008 检测和校准实验室能力的通用要求

ISO 3696 分析实验室用水 规范和检测方法(Water for analytical laboratory use—Specification and test methods)

3 术语和定义

下列术语和定义适用于本文件。

3.1

判断阈 decision threshold

用来判断是否有必要进行放射性检测的一个判断值,通常用 L_C 表示,错判(将应检测判断为不必检测)的概率 $\alpha=0.05$ 时, L_C 应满足式(1):

$$p_r(\hat{L} > L_C, L = 0) \leq \alpha \quad \dots\dots\dots(1)$$

式中:

\hat{L} ——检测的量, $L=0$ 表示被检测量分布的中心值为 0。

3.2

探测限 detection limit

最小可探测限 minimum detectable limit

能与本底或空白或基线值区分开的最小可探测信号值(通常用 L_D 表示),与本底或空白或基线值区分不开的错误概率 $\beta=0.05$ 时, L_D 应满足式(2):

$$p_r(\hat{L} \leq L_C, L = L_D) = \beta \quad \dots\dots\dots(2)$$

式中:

\hat{L} ——检测的量, $L=L_D$ 表示被检测量分布的中心值为 L_D 。

在尿样的放射性物质检测中,探测限按不同情况有时也表示为最小可探测活度(minimum detectable activity, MDA)或最小可探测活度浓度(minimum detectable activity concentration, MDC)。

3.3

本底计数率 background count rate

除样品的放射性外,其他因素引起的计数率。

3.4

探测效率 detection efficiency

在一定的探测条件下,测到的粒子数与在同一时间间隔内辐射源发射出的该种粒子总数的比值。

3.5

筛查水平 screening levels

总 α 和总 β 测量结果的放射性水平,用于是否需要进一步进行尿样中放射性核素分析的判断。

4 方法要点

4.1 当体内疑有 α 或纯 β 放射性核素污染时,应进行总 α 和总 β 放射性测定。

4.2 一般应按 GB 14883 推荐的方法对尿样进行浓缩预处理,再将其放在测量盘上,温度在 85 °C 以下,逐步蒸发到干燥,从而在测量盘上直接获得干燥的薄沉积待测样品,当检测系统灵敏度较高时,可以直接将尿样品进行上述处理。

4.3 对 α 测定,还可以通过共沉淀浓缩,过滤共沉淀物,并置于测量盘上形成待测样。

4.4 待测样的总 α 和总 β 放射性,用有 α 和 β 粒子探测器的系统进行计数测定,应用 α 和 β 发射体校准源对计数系统进行校准。

5 化学试剂和设备

5.1 试剂

5.1.1 标准溶液

5.1.1.1 α 标准溶液

应依据被检尿样中放射性核素的可能类型选择 α 标准溶液。通常使用人工 α 发射核素的标准溶液,例如, ^{241}Am 和 ^{239}Pu 标准溶液。当使用 ^{239}Pu 时,应考虑存在的一种杂质 ^{241}Pu ,因为它会影响 ^{241}Am 标准溶液的制备。当使用 ^{241}Am ,应考虑 γ 发射的潜在干扰。

5.1.1.2 β 标准溶液

应依据被检尿样中放射性核素的可能类型选择 β 标准溶液。在 105 °C 干燥到恒定质量的氯化钾中的 ^{40}K ,可以作为天然 β 发射体标准溶液。通常使用人工 β 发射核素的标准溶液,例如, ^{90}Sr - ^{90}Y 标准溶液。

5.1.1.3 润湿或表面活性剂

醋酸乙烯。

5.1.1.4 挥发性有机溶剂

乙醇。

5.1.1.5 水

应符合 ISO 3696 的要求。

5.1.1.6 α 发射核素共沉淀所需试剂

6 mol/L 氢氧化铵(NH_4OH)溶液;15.8 mol/L 硝酸(HNO_3)溶液;1 mol/L 硫酸(H_2SO_4)溶液;铁载体,5 mg/mL 铁溶液;钡载体,5 mg/mL 钡溶液。

5.1.2 其他试剂

除放射性标准溶液外,其他所有试剂应是分析纯级,而且不得含有任何可探测到的 α 和 β 活度。

5.2 设备

5.2.1 直接蒸发的实验室设备

实验室存储和样品制备常用设备应有加热盘,自动蒸发器或任何其他合适的仪器。

5.2.2 α 发射核素共沉淀的专业设备

带有搅拌设备的加热板;红外灯;真空过滤系统。

5.2.3 测量盘

宜用带嘴的不锈钢盘。测量盘的直径应依据探测器直径和计数器所用源固定器的大小而定。测量盘可用喷砂或化学蚀刻处理,或者可以使用波纹状测量盘。在共沉淀的特定情况下,应有一个环形支架将滤纸固定在测量盘上。

5.2.4 测量设备(α - β 计数器)

总 α 和总 β 活度测量既可用硅表面垒(SSB)检测器,也可以使用无窗正比计数器、离子注入硅探测器和薄窗($\leq 100 \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$)正比计数器。此外,总 α 和总 β 活度还可分别用银激活的硫化锌闪烁屏和塑料闪烁探测器进行计数测量。

6 样品采集、处理和制备

6.1 样品采集通用方法

6.1.1 参照 GB 14883 制定尿样品采样作业指导程序,并严格按此程序进行采样。

6.1.2 采样容器最好用容量不小于 3 L 的聚乙烯塑料桶。要能严密封口,并容易打开,而且容易清洗。应尽可能使用细口容器,容器的盖和塞的材料应与容器相同。在一些情况下,还需要用聚乙烯薄膜包裹,最好用蜡封包裹口。

6.1.3 采样前应将容器用水和洗涤剂清洗,除去灰尘、油垢后用自来水洗干净,然后加入适量 10% 硝酸(或盐酸)浸泡 8 h,取出沥干后用自来水冲洗 3 次,并用蒸馏水充分淋洗干净。

6.1.4 在开始采集时,尿样采集对象应排空并放弃此时的尿液,从此时间开始计时并留取以后的尿液,注意采集最后一次尿液,将 24 h 的尿液全部收集于规范的尿容器内,每个人员的尿样应装入各自取样容器中,不同人员的尿样不得混装;在尿样采集期,收集对象不要进行较激烈的运动。

6.2 尿样品预处理

6.2.1 将采集的尿样品混匀,按尿总体积的 2% 加入浓硝酸后摇匀防腐,低温存放,防止发酵。

6.2.2 结束取样,应立即测量 24 h 尿的总体积,称总质量,计算出相对密度,测量尿的尿肌酐量。

6.2.3 准确记录全尿样的体积、质量、相对密度、尿肌酐、采尿的始点和终点,被采尿人员的性别、年龄、

健康状况等信息。

6.3 尿样的运输和储存

6.3.1 采集的样品应妥善保管,要防止运输及储存过程中损失,防止样品被污染或交叉污染,样品存放时要防止由于化学和生物作用使核素吸附于器皿的壁上,要防止样品标签的损坏和丢失。

6.3.2 为避免污染,样品的运输及储存设备、储存容器和样品存放区应保持清洁,最好使用一次性储存容器。

6.3.3 储存样品时,应注意以下的事项:

- 在样品收集后,应采用适当的方法储存样品,避免降解、变质、分解或污染;
- 分析前需短期储存的样品,要求对样品冷藏、冷冻,或者外加防护剂(如亚硫酸氢钠,酒精);
- 样品需要长期储存时,在采样后,应立即将其转换为稳定的样品形式以便储存;
- 储存样本的容器应不对样品产生降解,尤其对加酸的液体样本的存储容器,宜使用聚乙烯材料;
- 储存时间不长的样品,通常可储存在冰箱里。如果预计需要较长时间的存储,可以添加如甲醛溶液或叠氮化钠防腐剂(5%水溶液,3.5 mL/L)以防止发酵。应记录好采样的日期。

6.4 待测样品的制备

6.4.1 尿样品、校准样品和空白样品通常不用酸化处理,而是将浓缩后的尿样直接在测量盘上蒸发、干燥和沉淀。如果特定情况下需要酸化处理,可以使用浓硝酸(不应使用盐酸)。

6.4.2 在进行直接沉淀前测量盘应按下述方法准备:

- 为确保测试样品能在测量盘上均匀分布,并使其均匀的表面密度沉淀粘结在测量盘上,应使用溶剂或表面活性剂对测量盘进行脱脂处理;
- 为防止实验室环境气氛引起任何改性,已脱脂处理的测量盘没有立即使用时应保存在干燥器中。
- 在使用前称测量盘,并记录其质量(m_p)。如果使用共沉淀方法,使用前称测量盘和滤纸,并记录其质量(m_{pf});
- 为减少交叉污染,不宜重复使用测量盘。如果要重复使用,应确保测量盘没有被污染。

6.4.3 直接蒸发沉淀程序如下:

- 使用不确定度已知的自动或非自动化加样器将部分浓缩样品放到测量盘中,小心地蒸发干燥。为减少飞溅引起的丢失,应保持整个测量盘的表面温度在 85 °C 以下,需避免有任何过热的区域。在将测量盘中的检测部分蒸发干以前,可以使用适当的设备预蒸发。使用蚀刻或喷砂的测量盘容易得到最好的均匀沉淀;
- 为限制自吸收现象,剩下的沉淀物应形成一个表面密度均匀的薄层,并确保与校准源的几何形状一致。如果沉淀没有均匀散开,可适当加润湿或表面活性剂;
- 在测量盘冷却到室温后,进行称重,记录其质量(m_{pd}),沉淀的质量(m_d),用式(3)计算:

$$m_d = m_{pd} - m_p \quad \dots\dots\dots (3)$$

式中:

m_d ——尿液沉淀的质量,单位为克(g);

m_{pd} ——测量盘与沉淀的质量之和,单位为克(g);

m_p ——测量盘的质量,单位为克(g)。

6.4.4 共沉淀程序如下:

- 推荐工作体积为 500 mL,当被测样品体积较小,可加水到 500 mL;当被测样品体积大于 500 mL,可蒸发浓缩到 500 mL;

- b) 调节工作体积内的 pH 至 7.0 ± 0.5 ;
- c) 加入 20 mL 硫酸,在加热盘上约煮 5 min,并同时搅拌;
- d) 在温度达到 $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右时,加入 1 mL 钡载体溶液,搅拌 30 min;
- e) 用钡硫酸盐沉淀;
- f) 再加 1 mL 铁载体溶液;
- g) 用氢氧化铵一滴一滴调整 pH,直到铁(III)氢氧化物沉淀出现;继续搅拌 30 min;
- h) 过滤共沉淀物;
- i) 将滤纸放入可辨识的测量盘中,为避免干燥时变形,用环形支架将其固定在测量盘上;在适中的温度下将其干燥;
- j) 在测量盘和滤纸冷却到室温后,对其进行称重,并记录其质量(m_{ptd});
- k) 用式(4)确定沉淀的质量:

$$m_{\text{d}} = m_{\text{ptd}} - m_{\text{pf}} \quad \dots\dots\dots(4)$$

式中:

- m_{d} ——尿液沉淀的质量,单位为克(g);
- m_{ptd} ——测量盘与滤纸以及沉淀的质量之和,单位为克(g);
- m_{pf} ——测量盘与滤纸的质量,单位为克(g)。

6.4.5 常规尿样测量一般应通过蒸发浓缩尿样来提高测量的灵敏度。蒸发浓缩时,其操作程序如下:

- a) 量取一定体积的尿样摇匀放至无泡沫,将适量样品放入蒸发容器(如瓷蒸发皿或烧杯)中;
- b) 使用电炉或沙浴加热蒸发容器,在 $70\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下蒸发,当液体量减少一半时,加入剩余样品,继续此过程,直至样品加完;
- c) 液体量很少时,将其转移至小瓷蒸发皿中浓缩。使用过的容器用少量蒸馏水洗涤,并加入浓缩液。遇到器壁上有悬浮物等吸附时,用淀帚仔细擦洗,洗涤合并入浓缩液,蒸发浓缩至 20 mL,作为浓缩液体样待测;
- d) 如需继续浓缩干燥,可用红外灯加热,一直浓缩到水相几乎消失。塑料测量容器遇强热有时会变形,应注意灯和样品的距离不要太近。

6.4.6 蒸发浓缩液样品应注意以下事项:

- a) 当用不锈钢盘蒸发液体样品时,要避免样品的飞溅和损失,为此,宜使用由温控的旋转蒸发器或蒸发灯;
- b) 蒸发容器应用不吸收放射性核素的材料制成;
- c) 放射性碘、氡、钷等核素蒸发时的温度不宜高于 $70\text{ }^{\circ}\text{C}$;
- d) 需要快速蒸发时,宜使用转动蒸发系统,这时可蒸发不同体积,最多不要超过 3 L。

7 尿的筛查水平

7.1 尿样分析中,首先应首先确定 α 和 β 的总放射性。仅在总 α 或总 β 放射性高于各自的筛查水平时,才需要进行尿样中放射性核素的分析。

7.2 尿样中的筛查水平,总 α 活度为 $5 \times 10^{-5} \text{ Bq/L}$,总 β 活度为 0.3 Bq/L 。

7.3 常规的总放射性活度测量中,往往探测不到发射低能量 β 的放射性核素、一些气体(如氡)和易挥发的放射性核素(如碘),因此在总放射性活度筛查标准中不包括这类 β 放射性核素。常规分析没有必要分析这些放射性核素,但如果需要分析,应采用特定放射性核素的采样和测量技术。

7.4 钾是人体必需的基本元素,主要是通过摄入食物被吸收。如果测量的总 β 超过 0.3 Bq/L 的筛查水平,应评估减去钾-40 对 β 的贡献后的总 β 。方法是首先确定总钾,再考虑到总钾中钾-40 的 β 比活度为 27.9 Bq/g ,从而可以计算钾-40 的 β 放射性。

8 总 α 和总 β 的测量程序

8.1 本底和空白样的测定

8.1.1 在与测量待测样品同样条件下,测量清洁测量盘的本底放射性活度。重复计数,直到本底测量值稳定。

8.1.2 如果用了试剂,在与测量待测样品同样条件下,测定清洁测量盘和试剂的空白样活度。重复计数确认空样,直到空白样测量值稳定。

8.2 计数系统校准

8.2.1 应准备一个几何和基质条件(测量盘、带沉淀物的滤纸和将其固定在测量盘的环形支架等)与待测样品相匹配的校准源溶液。

8.2.2 将已知准确称量(约 5 Bq~10 Bq)的标准源溶液加入原始尿样中,或直接将标准源溶液加到测量盘上,并使用相同的源制备程序。

8.2.3 这些标准源用探测器测量,按不确定度为 1% 设定计数时间(至少应 10 000 个计数)。

8.2.4 α 和 β 计数效率分别用式(5)和式(6)计算:

$$\epsilon_{\alpha} = \frac{r_{S\alpha} - r_{0\alpha}}{A_{\alpha}} \dots\dots\dots (5)$$

式中:

ϵ_{α} —— α 的计数效率;

$r_{S\alpha}$ ——从 α 窗口的样品计数率,单位为每秒(s^{-1});

$r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s^{-1});

A_{α} —— α 校准源的活度,单位为贝可(Bq)。

$$\epsilon_{\beta} = \frac{r_{S\beta} - r_{0\beta}}{A_{\beta}} \dots\dots\dots (6)$$

式中:

ϵ_{β} —— β 的计数效率;

$r_{S\beta}$ ——从 β 窗口的样品计数率,单位为每秒(s^{-1});

$r_{0\beta}$ ——从 β 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s^{-1});

A_{β} —— β 校准源的活度,单位为贝可(Bq)。

8.2.5 一般情况下,无需对 β 粒子计数效率进行自吸收校准。对 α 粒子计数效率需要进行自吸收的校准,自吸收直接取决于样品源厚度,其自吸收因子用式(7)定义和估计:

$$f_{a\alpha} = \frac{\epsilon_{a\alpha}}{\epsilon_{\alpha}} \dots\dots\dots (7)$$

式中:

$f_{a\alpha}$ —— 样品 a 对 α 粒子的自吸收因子;

$\epsilon_{a\alpha}$ —— 样品 a 对 α 粒子的计数效率;

ϵ_{α} —— α 的计数效率。

8.2.6 对同一样品 a,在相同条件下制备两个测试样。其中一个为无需自吸收校准的测试样,另一个为自吸收测试样,都添加已知活度的标准溶液。样品 a 对 α 的计数效率用式(8)计算:

$$\epsilon_{a\alpha} = \frac{r_{a\alpha} - r_{g\alpha}}{A_a} \dots\dots\dots (8)$$

式中:

$\epsilon_{a\alpha}$ ——样本 a 对 α 的计数效率;

$r_{a\alpha}$ ——从 α 窗口的样品 a 自吸收样的计数率,单位为每秒(s^{-1});

$r_{g\alpha}$ ——从 α 窗口的样品 a 的计数率,单位为每秒(s^{-1});

A_a ——样品 a 中加进的放射性活度,单位为贝可(Bq)。

8.2.7 制备一组校准源,它们有相同的标准活度和不同质量,按 8.2.5 测定自吸收效率。从测量的数据,可以得到自吸收因子随质量变化的函数关系。

9 测量数据的处理及结果报告

9.1 活度浓度计算

9.1.1 α 活度浓度 c_α 可用式(9)计算:

$$c_\alpha = (r_{g\alpha} - r_{0\alpha})\omega \quad \dots\dots\dots(9)$$

式中:

c_α —— α 活度浓度,单位为贝可每升(Bq/L);

$r_{g\alpha}$ ——从 α 窗口的样品 a 的计数率,单位为每秒(s^{-1});

$r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s^{-1});

ω ——活度修正因子,单位为每升(L^{-1}),可用式(10)表示:

$$\omega = \frac{1}{V\epsilon_\alpha f_{a\alpha}} \quad \dots\dots\dots(10)$$

式中:

V ——测量样品的体积,单位为升(L);

ϵ_α —— α 的计数效率;

$f_{a\alpha}$ ——样品 a 对 α 粒子的自吸收因子。

9.1.2 β 活度浓度 c_β 可以用式(11)计算:

$$c_\beta = \frac{r_{g\beta} - r_{0\beta} - \frac{r_{S\alpha \rightarrow \beta}}{r_{S\alpha}}(r_{g\beta} - r_{0\beta})}{V\epsilon_\beta f_{a\beta}} \quad \dots\dots\dots(11)$$

式中:

c_β —— β 活度浓度,单位为贝可每升(Bq/L);

$r_{g\beta}$ ——从 β 窗口的样品 a 的计数率,单位为每秒(s^{-1});

$r_{0\beta}$ ——从 β 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s^{-1});

$r_{S\alpha \rightarrow \beta}$ ——是测量 α 校准源时 β 窗口的计数率,单位为每秒(s^{-1});

$r_{S\alpha}$ ——从 α 窗口的样品计数率,单位为每秒(s^{-1});

V ——测量样品的体积,单位为升(L);

ϵ_β —— β 的计数效率;

$f_{a\beta}$ ——样品 a 对 β 粒子的自吸收因子。

χ 是 α 对 β 的串扰修正因子,可用式(12)计算:

$$\chi = \frac{r_{S\alpha \rightarrow \beta}}{r_{S\alpha}} \quad \dots\dots\dots(12)$$

式中:

χ —— α 对 β 的串扰修正因子;

$r_{S\alpha \rightarrow \beta}$ ——是测量 α 校准源时 β 窗口的计数率,单位为每秒(s^{-1});

r_{Sa} ——从 α 窗口的样品计数率,单位为每秒(s^{-1})。

9.2 标准不确定度计算

α 和 β 活度浓度标准不确定度的计算详见附录 A 中 A.1。

9.3 判断阈和探测限的计算

α 和 β 活度浓度判断阈和探测限的计算分别见附录 A 中 A.2 和 A.3。

9.4 置信限区间的计算

置信限区间的计算详见附录 A 中 A.4。

9.5 检测报告

检测报告应符合 GB/T 27025 的要求,并至少包括如下的信息:

- 参照的国家标准;
- 为完整的样本鉴定所必需的所有信息;
- 结果表示的单位;
- 检测结果, $c_A \pm u(c_A)$ 或 $c_A \pm U$, 与此相关的 k 值。

还可以提供如下的补充信息,如:

- 概率 α , β 和 $(1-\gamma)$;
- 探测阈和探测限;
- 低于探测阈或探测限时按如下方式报告结果:

当活度浓度, c_A 与探测阈比较,其测量结果低于探测阈,结果应表示为 $\leq C_A^*$,

当活度浓度, c_A 与探测限比较,其测量结果低于探测限,结果应表示为 $\leq C_A^\#$ 。

10 检测的质量控制

10.1 污染控制

应将所用到的试剂,检测其是否有放射性污染,其活度应可以忽略不计。

10.2 活度损失控制

10.2.1 氡同位素

应当控制氡等一些放射性核素在蒸发步骤可能由于挥发而损失。例如,虽然 ^{222}Rn 在处理过程中会丢失,然而应考虑 ^{226}Ra 的子体放射性核素,随后成长为计数源。钍系列 ^{224}Ra 之子体放射性核素也会发生类似的情况。

10.2.2 钋

一些 α -发射的钋同位素有时对尿的总 α 测量会产生影响,特别是在相对低的温度,其卤化物还可能挥发。

附录 A

(规范性附录)

标准不确定度、判断阈和探测限的计算

A.1 标准不确定度的计算

A.1.1 α 活度浓度的标准不确定度A.1.1.1 α 活度浓度的标准不确定度用式(A.1)计算:

$$u(c_A) = \sqrt{\omega^2 [u^2(r_{g\alpha}) + u^2(r_{0\alpha})] + c_A^2 u_{\text{rel}}^2(c_A)}$$

$$= \sqrt{\omega^2 \left[\frac{r_{g\alpha}}{t_g} + \frac{r_{0\alpha}}{t_0} \right] + c_A^2 u_{\text{rel}}^2(c_A)}$$

.....(A.1)

式中:

- c_A —— α 活度浓度,单位为贝可每升(Bq/L);
- $u(c_A)$ —— c_A 测量结果的标准不确定度,单位为贝可每升(Bq/L);
- ω —— 活度修正因子,单位为每升(L⁻¹);
- $u(r_{g\alpha})$ —— $r_{g\alpha}$ 测量结果的标准不确定度,单位为贝可每升(Bq/L);
- $u(r_{0\alpha})$ —— $r_{0\alpha}$ 测量结果的标准不确定度,单位为贝可每升(Bq/L);
- $u_{\text{rel}}(c_A)$ —— c_A 测量结果的相对标准不确定度;
- $r_{g\alpha}$ —— 从 α 窗口的样品 a 的计数率,单位为每秒(s⁻¹);
- $r_{0\alpha}$ —— 从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
- t_g —— 样品测量时间,单位为秒(s);
- t_0 —— 本底测量时间,单位为秒(s)。

A.1.1.2 由于计数时间和共沉淀阶段的不确定度比其他来源的不确定度要小很多,可以忽略, ω 的不确定度用式(A.2)计算:

$$u_{\text{rel}}^2(\omega) = u_{\text{rel}}^2(\epsilon_\alpha) + u_{\text{rel}}^2(V) + u_{\text{rel}}^2(f_{\alpha\alpha}) \quad \text{.....(A.2)}$$

式中:

- $u_{\text{rel}}(\omega)$ —— ω 的相对不确定度;
- $u_{\text{rel}}(\epsilon_\alpha)$ —— ϵ_α 测量结果的相对不确定度;
- $u_{\text{rel}}(V)$ —— 体积测量结果的相对不确定度;
- $u_{\text{rel}}(f_{\alpha\alpha})$ —— $f_{\alpha\alpha}$ 测量结果的相对不确定度。

A.1.1.3 ϵ_α 的相对不确定度用式(A.3)计算:

$$u_{\text{rel}}^2(\epsilon_\alpha) = u_{\text{rel}}^2(r_{S\alpha} - r_{0\alpha}) + u_{\text{rel}}^2(A_\alpha) = \frac{(r_{S\alpha}/t_S) + (r_{0\alpha}/t_0)}{(r_{S\alpha} - r_{0\alpha})^2} + u_{\text{rel}}^2(A_\alpha) \quad \text{.....(A.3)}$$

式中:

- $u_{\text{rel}}(\epsilon_\alpha)$ —— ϵ_α 的相对不确定度;
- $u_{\text{rel}}(r_{S\alpha} - r_{0\alpha})$ —— 测量结果的相对不确定度;
- $r_{S\alpha}$ —— 从 α 窗口的样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
- $r_{0\alpha}$ —— 从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
- t_S —— 样品测量时间,单位为秒(s);

- t_0 ——本底测量时间,单位为秒(s);
 $u_{\text{rel}}^2(A_\alpha)$ ——与校准源相关的所有不确定度。

A.1.2 β 活度浓度的标准不确定度

β 活度浓度的标准不确定度用式(A.4)~(A.6)计算:

$$u(c_A) = \sqrt{\omega^2 \left[u^2(r_{g\beta}) + u^2(r_{0\beta}) + (r_{g\alpha} - r_{0\alpha})^2 \frac{\chi(\chi+1)}{r_{S\alpha} t_{S\alpha}} + \chi^2 \left(\frac{r_{g\alpha}}{t_g} + \frac{r_{0\alpha}}{t_0} \right) \right] + c_A^2 u_{\text{rel}}^2(\omega)} \quad \dots\dots (A.4)$$

式中:

- $u(c_A)$ —— β 活度浓度的标准不确定度;
 ω ——为活度修正因子,单位为每升(L⁻¹);
 $u(r_{g\beta})$ —— $r_{g\beta}$ 的不确定度;
 $u(r_{0\beta})$ —— $r_{0\beta}$ 的不确定度;
 $r_{g\alpha}$ ——从 α 窗口的样品 a 的计数率,单位为每秒(s⁻¹);
 $r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
 χ —— α 对 β 的串扰修正因子;
 $r_{S\alpha}$ ——从 α 窗口的样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
 $t_{S\alpha}$ ——从 α 窗样品测量时间,单位为秒(s);
 t_g ——样品测量时间,单位为秒(s);
 t_0 ——本底测量时间,单位为秒(s);
 c_A ——活度浓度,单位为贝可每升(Bq/L);
 $u_{\text{rel}}(\omega)$ —— ω 的相对不确定度。

为简化公式(A.5),定义 $T(\chi)$ 为简化因子,如式(A.6)所示:

$$T(\chi) = (r_{g\alpha} - r_{0\alpha})^2 \frac{\chi(\chi+1)}{r_{S\alpha} t_{S\alpha}} + \chi^2 \left(\frac{r_{g\alpha}}{t_g} + \frac{r_{0\alpha}}{t_0} \right) \quad \dots\dots\dots (A.5)$$

式中:

- $T(\chi)$ ——简化因子;
 $r_{g\alpha}$ ——从 α 窗口的样品 a 的计数率,单位为每秒(s⁻¹);
 $r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
 χ —— α 对 β 的串扰修正因子;
 $r_{S\alpha}$ ——从 α 窗口的样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
 $t_{S\alpha}$ ——从 α 窗样品测量时间,单位为秒(s);
 t_g ——样品测量时间,单位为秒(s);
 t_0 ——本底测量时间,单位为秒(s)。

则式(A.4)可简化写为式(A.6):

$$u(c_A) = \sqrt{\omega^2 \left[\frac{r_{g\alpha}}{t_g} + \frac{r_{0\alpha}}{t_0} + T(\chi) \right] + c_A^2 u_{\text{rel}}^2(\omega)} \quad \dots\dots\dots (A.6)$$

式中:

- $u(c_A)$ —— β 活度浓度的标准不确定度;
 ω ——活度修正因子,单位为每升(L⁻¹);
 $r_{g\alpha}$ ——从 α 窗口的样品 a 的计数率,单位为每秒(s⁻¹);
 t_g ——样品测量时间,单位为秒(s);
 $r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);

- t_0 ——本底测量时间,单位为秒(s);
 $T(\chi)$ ——简化因子;
 χ —— α 对 β 的串扰修正因子;
 c_A ——活度浓度,单位为贝可每升(Bq/L);
 $u_{\text{rel}}(\tau\omega)$ —— $\tau\omega$ 的相对不确定度。

当计数时间的不确定度比其他不确定度来源小很多时,可以忽略其不确定度,因而, $\tau\omega$ 的相对不确定度用式(A.7)计算:

$$u_{\text{rel}}^2(\tau\omega) = u_{\text{rel}}^2(\epsilon_\beta) + u_{\text{rel}}^2(V) \quad \dots\dots\dots(\text{A.7})$$

式中:

- $u_{\text{rel}}(\tau\omega)$ —— $\tau\omega$ 的相对不确定度;
 $u_{\text{rel}}(V)$ ——体积的相对不确定度;
 $u_{\text{rel}}(\epsilon_\beta)$ —— ϵ_β 测量结果的相对不确定度,具体由式(A.8)计算:

$$u_{\text{rel}}^2(\epsilon_\beta) = u_{\text{rel}}^2(r_{\text{S}\beta} - r_{0\beta}) + u_{\text{rel}}^2(A_\beta) \quad \dots\dots\dots(\text{A.8})$$

式中:

- $r_{0\beta}$ ——从 β 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s^{-1});
 $r_{\text{S}\beta}$ ——从 β 窗口的样品a的计数率,单位为每秒(s^{-1});
 $u_{\text{rel}}(r_{\text{S}\beta} - r_{0\beta})$ ——测量结果的不确定度;
 $u_{\text{rel}}(A_\beta)$ ——标准溶液和校准源的相对不确定度。

A.2 判断阈的计算

A.2.1 α 活度浓度判断阈

对 $\tilde{c}_A=0$ 而言,判断阈 c_A^* 可用式(A.9)计算:

$$c_A^* = k_{1-\alpha}\tau\omega\sqrt{\frac{r_{\text{g}\alpha}}{t_{\text{g}}} + \frac{r_{0\alpha}}{t_0}} \quad \dots\dots\dots(\text{A.9})$$

缺省情况下,一般取 $\alpha=0.05$,这时 $k_{1-\alpha}=1.65$ 。

式中:

- c_A^* ——浓度活度判断阈;
 $k_{1-\alpha}$ ——置信因子;
 α ——概率区间;
 $\tau\omega$ ——活度修正因子,单位为每升(L^{-1});
 $r_{\text{g}\alpha}$ ——从 α 窗口的样品a的计数率,单位为每秒(s^{-1});
 t_{g} ——样品测量时间,单位为秒(s);
 $r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s^{-1});
 t_0 ——本底测量时间,单位为秒(s)。

A.2.2 β 活度浓度判断阈

对 $\tilde{c}_A=0$ 而言,判断阈 c_A^* ,可用式(A.10)计算:

$$c_A^* = k_{1-\alpha}\tilde{u}(0) = k_{1-\alpha}\tau\omega\sqrt{\frac{\chi(r_{\text{g}\alpha} - r_{0\alpha})}{t_{\text{g}}} + \frac{r_{0\beta}}{t_0} + T(\chi)} \quad \dots\dots\dots(\text{A.10})$$

缺省情况下,一般取 $\alpha=0.05$,这时 $k_{1-\alpha}=1.65$ 。

式中:

- c_A^* ——浓度活度判断阈;
- $k_{1-\alpha}$ ——置信因子;
- α ——概率区间;
- $\tilde{u}(0)$ ——活度浓度的不确定度;
- ω ——活度修正因子,单位为每升(L⁻¹);
- χ —— α 对 β 的串扰修正因子;
- $r_{g\alpha}$ ——从 α 窗口的样品 a 的计数率,单位为每秒(s⁻¹);
- $r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
- t_g ——样品测量时间,单位为秒(s);
- $r_{0\beta}$ ——从 β 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
- t_0 ——本底测量时间,单位为秒(s);
- $T(\chi)$ ——简化因子。

A.3 探测限的计算

A.3.1 α 活度浓度的探测限

探测限 $c_A^\#$ 满足式(A.11):

$$c_A^\# = c_A^* + k_{1-\alpha} \tilde{u}(c_A^\#) \dots\dots\dots (A.11)$$

$$= c_A^* + k_{1-\beta} \sqrt{\omega^2 \left[\frac{(c_A^\# / \omega) + r_{0\alpha}}{t_g} + \frac{r_{0\alpha}}{t_0} \right] + c_A^\#{}^2 u_{\text{rel}}^2(\omega)}$$

式中:

- $c_A^\#$ ——活度浓度判断限;
- c_A^* ——活度浓度判断阈;
- $k_{1-\alpha}$ ——置信因子;
- $\tilde{u}(c_A^\#)$ ——活度浓度的不确定度;
- $k_{1-\beta}$ ——置信因子;
- α ——概率区间;
- β ——概率区间;
- ω ——活度修正因子,单位为每升(L⁻¹);
- $r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率,单位为每秒(s⁻¹);
- t_g ——样品测量时间,单位为秒(s);
- t_0 ——本底测量时间,单位为秒(s);
- $u_{\text{rel}}(\omega)$ —— ω 的相对不确定度。

缺省值通常选择 $\beta=0.05$,这时 $k_{1-\beta}=1.65$ 。

通过解方程可以计算 $c_A^\#$,在要求不高的情况下可用简单的近似式 $c_A^\# = 2c_A^*$ 计算。

当取 $\alpha=\beta$,则 $k_{1-\alpha}=k_{1-\beta}=k$,由式(A.11)可得到式(A.12):

$$c_A^\# = \frac{2c_A^* + (k^2 \omega / t_g)}{1 - k^2 u_{\text{rel}}^2(\omega)} \dots\dots\dots (A.12)$$

式中:

- $c_A^\#$ ——活度浓度判断限;
- c_A^* ——活度浓度判断阈;

- k ——置信因子；
 ω ——活度修正因子，单位为每升(L⁻¹)；
 t_g ——样品测量时间，单位为秒(s)；
 $u_{\text{rel}}(\omega)$ —— ω 的相对不确定度。

A.3.2 β 活度浓度的探测限

探测限 $c_A^\#$ 满足式(A.13)：

$$c_A^\# = c_A^* + k_{1-\beta} \tilde{u}(c_A^\#)$$

$$= c_A^* + k_{1-\beta} \sqrt{\omega^2 \left\{ \left[\frac{(c_A^\# / \omega) + \chi(r_{g\alpha} - r_{0\alpha}) + r_{0\beta}}{t_g} \right] + \frac{r_{0\beta}}{t_0} + T(\chi) \right\} + c_A^{\#2} u_{\text{rel}}^2(\omega)}$$

.....(A.13)

式中：

- $c_A^\#$ ——活度浓度判断限；
 c_A^* ——活度浓度判断阈；
 $\tilde{u}(c_A^\#)$ ——活度浓度的不确定度；
 $k_{1-\beta}$ ——置信因子；
 ω ——活度修正因子，单位为每升(L⁻¹)；
 χ —— α 对 β 的串扰修正因子；
 $r_{0\alpha}$ ——从 α 窗口的本底样品计数率，单位为每秒(s⁻¹)；
 $r_{g\alpha}$ ——从 α 窗口的样品 a 的计数率，单位为每秒(s⁻¹)；
 $r_{0\beta}$ ——从 β 窗口的本底样品计数率，单位为每秒(s⁻¹)；
 t_g ——样品测量时间，单位为秒(s)；
 t_0 ——本底测量时间，单位为秒(s)；
 $T(\chi)$ ——简化因子；
 $u_{\text{rel}}(\omega)$ —— ω 的相对不确定度。

缺省值通常选择 $\beta=0.05$ ，这时 $k_{1-\beta}=1.65$ 。

通过解方程可以计算 $c_A^\#$ ，在要求不高的情况下可用简单的近似公式 $c_A^\# = 2c_A^*$ 计算。

当取 $\alpha=\beta$ ，则 $k_{1-\alpha}=k_{1-\beta}=k$ ，由等式(A.13)可得到式(A.14)：

$$c_A^\# = \frac{2c_A^* + (k^2 \omega / t_g)}{1 - k^2 u_{\text{rel}}^2(\omega)} \quad \text{.....(A.14)}$$

式中：

- $c_A^\#$ ——活度浓度判断限；
 c_A^* ——活度浓度判断阈；
 k ——置信因子；
 ω ——活度修正因子，单位为每升(L⁻¹)；
 t_g ——样品测量时间，单位为秒(s)；
 $u_{\text{rel}}(\omega)$ —— ω 的相对不确定度。

A.4 置信限区间的计算

置信下限 $c_A^<$ 用式(A.15)计算：

$$c_A^{\triangleleft} = c_A - k_P u(c_A) \quad P = \omega \left(1 - \frac{\gamma}{2}\right) \dots\dots\dots (A.15)$$

式中:

- c_A^{\triangleleft} ——置信限下限;
- c_A ——活度浓度测量结果;
- k_P ——置信因子;
- P ——概率区间;
- $u(c_A)$ ——活度浓度的标准不确定度;
- ω ——标准正态数据分布函数;
- γ ——概率区间。

置信限上限 c_A^{\triangleright} 用式(A.16)来计算:

$$c_A^{\triangleright} = c_A + k_q u(c_A) \quad q = 1 - \frac{\omega\gamma}{2} \dots\dots\dots (A.16)$$

式中:

- c_A^{\triangleright} ——置信限上限;
- c_A ——活度浓度测量结果;
- k_q ——置信因子;
- q ——概率区间;
- $u(c_A)$ ——活度浓度的标准不确定度;
- ω ——标准正态数据分布函数;
- γ ——概率区间。

如果 $c_A \geq 4 u(c_A)$ 设置 $\omega = 1$, 在这种情况下:

$$c_A^{\triangleleft\triangleright} = c_A \pm k_{1-(\gamma/2)} u(c_A) \dots\dots\dots (A.17)$$

式中:

- $c_A^{\triangleleft\triangleright}$ ——置信限区间;
- c_A ——活度浓度测量结果;
- $k_{1-(\gamma/2)}$ ——置信因子;
- γ ——概率区间;
- $u(c_A)$ ——活度浓度的标准不确定度。

在缺省情况下,通常取 $\gamma = 0.05$, 则 $k_{1-(\gamma/2)} = 1.96$ 。

参 考 文 献

- [1] GB/T 5750.13 生活饮用水标准检验方法 放射性指标
 - [2] GBZ 129 职业性内照射个人监测规范
 - [3] ISO 11929:2010 Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation—Fundamentals and application
 - [4] ISO 10704:2009 Water quality—Measurement of gross alpha and gross beta activity in non-saline water—Thin source deposit method
 - [5] ISO 27048:2011 Radiation protection—Dose assessment for the monitoring of workers for internal radiation exposure
 - [6] IAEA. TECDOC-1092. Generic Procedures for Monitoring in a Nuclear or Radiological Emergency, 1999
 - [7] IAEA. Safety Standards Series No. GSG-2, Criteria for use in Preparedness and Response for a Nuclear or Radiological Emergency, 2011
 - [8] IAEA. IAEA-TECDOC-1401. Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurements, 2004
 - [9] WHO, Guidelines for Drinking-water Quality, Fourth Edition, 2011
-