

# 广东大亚湾核电站环境放射性本底水平调查质量控制与评价

林炳兴 周治发 牟德海

(广东省测试分析研究所, 广州 510070)

报道了1988—1992年广东大亚湾核电站环境放射性本底水平调查的质控方法要点及其结果。文中用线性回归分析法对相关项目调查数据进行了相关统计检验,讨论了数据的一致性和可靠性,为调查结果的质量评价提供依据。

**关键词** 广东大亚湾核电站 环境放射性本底水平调查 质量控制 质量评价  
相关统计检验

核电站环境放射性本底水平调查是核电站运行前必须完成的一项基础性研究工作<sup>[1]</sup>。本底水平资料不仅是核电站选址阶段环境影响报告的重要科学依据,而且是核电站运行中环境监测和环境影响评价所需的重要资料,具有长期保存价值,要求数据准确可靠,具有计量学上的可比性。

环境放射性本底水平调查涉及陆地和海洋生态环境几十种介质、十几个项目的放射性测量。从采样、预处理到分析测量、数据处理等各个环节的质量控制,是低水平的放射性测量中的一个重要课题。

广东大亚湾核电站环境放射性本底水平调查,从1988年开始至1992年结束,前后分两期进行。本底调查中根据国家环保局的有关规定<sup>[2,3]</sup>,建立了质量保证体系,执行了规定的质量保证措施,进行系统的质量控制,并采用线性回归分析法对调查数据作相关统计检验,讨论调查结果的一致性和可靠性。

## 1 质控方法和技术要求

### 1.1 样品采集与预处理

(1) 样品采集严格按照采样程序和技术规范进行,保证样品的代表性。

(2) 样品采集和预处理所用的计量仪器均经国家计量部门检定。大气飘尘采样装置的过滤效率经现场测试,稳定在91%—93%。

收稿日期:1995-10-04 收到修改稿日期:1996-04-30

(3)生物样品的灰化处理按技术规范的升温程序进行。灰化处理对核素回收的影响经大亚湾环境样品灼烧试验验证, $^{137}\text{Cs}$ 的回收率与450℃下灼烧24h无显著性差异。

(4)100 l海水样品沉淀富集处理,核素的回收率经放射性示踪测定。

## 1.2 核素分析与放射性测量

(1)所有用于本底调查的放射性测量装置均经计量检定,并定期监测本底和刻度系数,绘制该装置的质控图。

参考物质或为国家标准部门提供的标准物质,或溯源到国家标准。

(2)承担本底调查任务的实验室均接受密码样品考核,考核合格者才能参加调查样品的分析测定。

(3)承担本底调查任务的实验室参加质控单位组织的国际、国内比对,比对结果达到质控要求。

(4)各项核素分析按调查样品总数的20%作平行分析,合格率不低于90%。

(5)由质控单位对调查样品随机抽样5%进行检查分析。土壤和生物样从处理好的干样和灰样开始,其余样品从采样开始。

(6)核素分析质控要求

核素含量范围	允许相对偏差
高于5倍探测限	$\leq 35\%$ (总 $\alpha$ ,总 $\beta \leq 50\%$ )
2-5倍探测限	$\leq 50\%$ (总 $\alpha$ ,总 $\beta \leq 100\%$ )
探测限水平及以下	不计误差

## 1.3 数据处理与数理统计检验

(1)本底调查数据采用格鲁布斯(Grubbs)检验法和正态概率纸作图法<sup>[4]</sup>检验离群值,讨论可疑数据的取舍,判断数据组呈正态分布或对数正态分布特征,给出数据组的平均值和标准偏差。

(2)采用线性回归分析法<sup>[5]</sup>对相关项目调查数据进行相关统计检验,讨论调查结果的一致性和可靠性。

假设两组数据 $x_i$ 和 $y_i$ 之间存在线性相关关系 $y=a+bx$ ,用最小二乘法原理求得回归系数的置信区间 $\hat{a} \pm \omega_a$ 和 $\hat{b} \pm \omega_b$ ,以及相关系数 $r$ ,

$$\hat{a} = \bar{y} - \hat{b} \cdot \bar{x} \quad \hat{b} = L_{xy}/L_{xx}$$

$$\omega_a = \omega_b \cdot \left[ \sum_{i=1}^n x_i^2 / (n-2) \right]^{1/2} \quad \omega_b = t \cdot S_t / L_{xx}^{1/2}$$

$$r = L_{xy} / (L_{xx} \cdot L_{yy})^{1/2}$$

$$\text{式中: } \bar{x} = \sum_{i=1}^n x_i / n \quad \bar{y} = \sum_{i=1}^n y_i / n$$

$$L_{xy} = \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})$$

$$L_{xx} = \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \quad L_{yy} = \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2$$

$$S_t = [L_{yy}(1-r^2)/(n-2)]^{1/2}$$

$t$ 为对应的自由度 $n-2$ 和指定置信度水平的置信系数。本报告设置置信度水平为95%。

若  $\hat{a} \pm \omega_a$  覆盖 0, 且  $\hat{b} \pm \omega_b$  覆盖 1, 则这两组数据具有一致性相关关系, 即不存在系统误差, 反之则存在系数误差。若某对测量值  $(x_i, y_i)$  落在置信区间外面, 则这对数据为可疑值, 需作复查改正, 或剔除处理。

## 2 结果与讨论

### 2.1 比对测量结果

本底调查期间, 大亚湾环境样品比对测量结果列入表 1—3。比对结果在质控允许误差范围内相一致。

表 1 大亚湾环境样品核素分析比对结果

单位: 水样 Bq/l, 生物样 Bq/kg

样品名称	比对项目	本研究 A	质控 B	$R_{A/B}$
水库水	总 $\alpha$	$0.106 \pm 0.042$	$0.077 \pm 0.067$	1.38
	总 $\beta$	$0.067 \pm 0.014$	$0.077 \pm 0.035$	0.86
	$^3\text{H}$	$1.6 \pm 0.1$	$2.4 \pm 1.5$	0.67
菜心	$^{90}\text{Sr}$	$0.140 \pm 0.018$	$0.191 \pm 0.029$	0.73
	$^7\text{Be}$ ( $\gamma$ 谱)	$0.087 \pm 0.045$	$0.090 \pm 0.031$	0.97
	$^{40}\text{K}$ ( $\gamma$ 谱)	$130 \pm 7$	$125 \pm 4$	1.04
	$^{137}\text{Cs}$ ( $\gamma$ 谱)	$0.005 \pm 0.004$	$0.008 \pm 0.002$	0.63
	$^{226}\text{Ra}$ ( $\gamma$ 谱)	$0.343 \pm 0.019$	$0.313 \pm 0.028$	1.10
	$^{232}\text{Th}$ ( $\gamma$ 谱)	$0.666 \pm 0.038$	$0.638 \pm 0.052$	1.04
	$^{238}\text{U}$ ( $\gamma$ 谱)	$0.359 \pm 0.050$	$0.250 \pm 0.095$	1.44

表 2 陆地环境  $\gamma$  剂量率比对测量结果

nGy/h

测点	本研究 A	质控 B	$R_{A/B}$
深圳沙头角(1)	$132 \pm 4$	$132 \pm 2$	1.00
深圳沙头角(2)	$129 \pm 3$	$130 \pm 2$	0.99
深圳盐田(1)	$128 \pm 5$	$128 \pm 2$	1.00
深圳盐田(2)	$131 \pm 5$	$128 \pm 2$	1.03
香港松柏气象站(1)	$131 \pm 4$	$130 \pm 3$	1.01
香港松柏气象站(2)	$131 \pm 3$	$130 \pm 3$	1.01
香港南涌山(1)	$125 \pm 3$	$123 \pm 2$	1.02
香港南涌山(2)	$113 \pm 3$	$113 \pm 2$	1.00

表 3 月累积剂量测量比对结果

$\mu\text{Gy}$

测点	本研究 A	质控 B	$R_{A/B}$
葵冲华侨果园	$64.3 \pm 8.5$	$64.1 \pm 6.4$	1.00
光明农场果园	$81.0 \pm 9.8$	$81.6 \pm 8.2$	0.99
大鹏卫生院菠萝地	$104.1 \pm 11.1$	$103.3 \pm 10.3$	1.01
核电厂机场	$118.1 \pm 11.4$	$115.0 \pm 11.5$	1.03

### 2.2 随机抽样测量结果

第二期本底调查期间, 由质控单位对调查样品随机抽样 5% 进行检查分析, 结果列入表 4—6。

表 4 <sup>3</sup>H 测量抽检结果

Bq/l

样品名称及编号	本底调查 A	抽检 B	R <sub>A/B</sub>
雨水 PC06	6.20	7.28	0.85
雨水 DW06	6.80	8.04	0.84
饮用水 DD06	5.22	6.44	0.81
饮用水 ST06	3.01	3.60	0.84
饮用水 DD09	<1.0	3.00	
饮用水 ST09	<1.0	1.58	
海水 S307	1.48	2.21	0.67
海水 S407	1.37	1.48	0.92

表 5 总 α、总 β、<sup>90</sup>Sr 测量抽检结果

单位:飘尘和水样 Bq/l,其它 Bq/kg

样品名称及编号	总 α			总 β			<sup>90</sup> Sr		
	调查结果 A	抽检结果 B	R <sub>A/B</sub>	调查结果 A	抽检结果 B	R <sub>A/B</sub>	调查结果 A	抽检结果 B	R <sub>A/B</sub>
大气飘尘 PC02	7.72×10 <sup>-4</sup>	6.67×10 <sup>-4</sup>	1.16	7.96×10 <sup>-4</sup>	3.83×10 <sup>-4</sup>	2.08	5.4×10 <sup>-7</sup>	6.1×10 <sup>-7</sup>	0.88
大气飘尘 HD02	1.25×10 <sup>-3</sup>	1.70×10 <sup>-3</sup>	0.72	1.05×10 <sup>-3</sup>	3.74×10 <sup>-3</sup>	0.30	5.8×10 <sup>-7</sup>	6.4×10 <sup>-7</sup>	0.91
雨水 PC03	68.0	93.4	0.73	41.7	102	0.41	<0.35	1.19	<0.3
饮用水 DL03	106	19.0	5.58	66.5	84.0	0.72	1.06	1.29	0.82
土壤 PC12	3.12×10 <sup>3</sup>	2.04×10 <sup>3</sup>	1.53	1.23×10 <sup>3</sup>	1.12×10 <sup>3</sup>	1.10	0.091	0.084	1.08
土壤 FL08	3.59×10 <sup>3</sup>	2.43×10 <sup>3</sup>	1.48	997	963	1.04			
菜心 ST03	12.4	15.9	0.78	65.4	72.8	0.90	0.081	0.229	0.35
白菜 DP03	7.8	10.6	0.74	75.5	78.7	0.96	0.179	0.189	0.94
萝卜 DP12	3.1	16.1	0.19	51.1	50.6	1.01	0.164	0.149	1.23
猪肉 ST04	<2.0	6.0	<0.33	49.1	36.3	1.35	0.016	0.015	1.07
马尾藻 R503	42.9	22.0	1.95	300	313	0.94	5.079	0.067	1.18

表 6 总 α、总 β、<sup>90</sup>Sr 测量抽检结果

单位:水样 Bq/l,其它 Bq/kg

样品及编号	<sup>40</sup> K			<sup>137</sup> Cs			<sup>226</sup> Ra			<sup>232</sup> Th			<sup>238</sup> U		
	本报告 A	抽检 B	R <sub>A/B</sub>	本报告 A	抽检 B	R <sub>A/B</sub>	本报告 A	抽检 B	R <sub>A/B</sub>	本报告 A	抽检 B	R <sub>A/B</sub>	本报告 A	抽检 B	R <sub>A/B</sub>
果园土 PC12	585	629	0.93	2.63	1.54	1.71	62.8	62.4	1.01	74.5	72.6	1.03	38.8	42.6	0.91
底泥 FL08	459	521	0.88				141	120	1.18	160	162	0.99	116	76.5	1.52
菜心 ST03	75.6	72.9	1.04				0.641	0.600	1.07	2.07	1.91	1.08			
白菜 DP03	79.5	80.4	0.99				0.437	0.587	0.74	1.04	1.12	0.93			
萝卜 DP12	58.0	59.2	0.98	0.018	<0.040		0.152	0.189	0.80	0.404	0.297	1.36	<0.46	0.394	
猪肉 ST04	48.6	53.5	0.91	0.273	0.272	1.00	<0.034	0.143							
海藻 R503	270	327	0.82	0.050	<0.286		1.94	1.95	0.99	5.45	6.23	0.87			
海水 S312				2.14	2.61	0.82	3.80	3.81	1.00	11.5	16.3	0.70	34.7	32.4	1.07
海水 S303				2.27	3.24	0.70	4.18	2.96	1.41	9.77	12.6	0.78	30.0	28.1	1.15

根据质控技术要求,总 α 和总 β 抽检合格率为 73%,其余项目高于 80%。

总 α、总 β 测量影响因素较多,质控难度较大,抽检合格率较低。大亚湾大气环境中存在较高浓度的<sup>7</sup>Be,<sup>7</sup>Be 电子俘获衰变对总 β 放射性的贡献和影响也许是大气飘尘和雨水总 β 放射

性测量出现偏差的原因之一。

### 2.3 $^{137}\text{Cs}$ $\gamma$ 谱测量与放化分析的一致性

大亚湾本底调查,  $^{137}\text{Cs}$  含量用 Ge- $\gamma$  谱测定, 部分样品用放化分析法(GB 11221-89, 磷钼酸铵沉淀法)作对照分析。两种方法测得的两组数据的相关统计检验图示于图 1。线性回归的相关系数为 0.936, 回归系数的置信区间  $\hat{a}=0.010\pm 0.031$ ,  $\hat{b}=0.904\pm 0.240$ , 分别覆盖 0 和 1, 表明两种方法测得的  $^{137}\text{Cs}$  相一致, 无系统误差。

### 2.4 $^{40}\text{K}$ $\gamma$ 谱测量与化学分析的一致性

大亚湾本底调查样品中  $^{40}\text{K}$  含量用  $\gamma$  谱测量, 同时用放化分析法测定了钾含量。由测得的钾含量计算的  $^{40}\text{K}$  含量与  $\gamma$  谱测量结果, 按环境介质品种分组, 用线性回归分析法进行相关统计检验。图 2 为菜心样品  $^{40}\text{K}$   $\gamma$  谱测量与放化分析的相关统计检验图。该统计检验的相关系数为 0.970, 回归系数的置信区间  $\hat{a}=10.3\pm 11.6$ ,  $\hat{b}=1.050\pm 0.118$ , 分别覆盖 0 和 1, 表明两种方法测得的  $^{40}\text{K}$  具有良好的一致性。

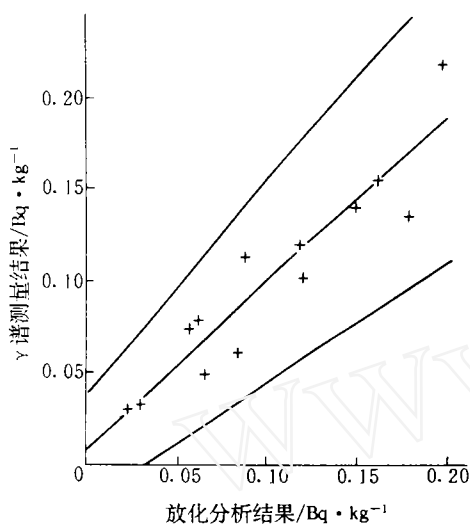


图 1  $^{137}\text{Cs}$   $\gamma$  谱测量与放化分析相关统计检验图

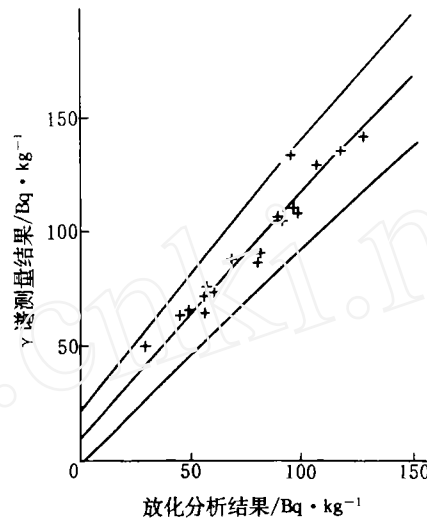


图 2  $^{40}\text{K}$   $\gamma$  谱测量与化学分析相关统计检验图

### 2.5 总 $\alpha$ 、总 $\beta$ 与核素含量之间的相关性

环境样品的总  $\alpha$ 、总  $\beta$  放射性应分别与样品中  $\alpha$  放射性核素活度和及  $\beta$  放射性核素活度和相一致, 它们的比值应近似等于 1。

图 3 和图 4 分别为每千克大亚湾海藻样品  $\alpha$  核素活度和 ( $A_\alpha$ ) 对总  $\alpha$  放射性 ( $A_{T\alpha}$ )、 $\beta$  核素活度和 ( $A_\beta$ ) 对总  $\beta$  放射性 ( $A_{T\beta}$ ) 的相关统计检验图。前者相关系数为 0.926, 回归系数  $\hat{a}=0.3\pm 36.5$ ,  $\hat{b}=0.987\pm 0.402$ ; 后者相关系数为 0.986, 回归系数  $\hat{a}=1.9\pm 43.7$ ,  $\hat{b}=0.925\pm 0.159$ 。两者回归系数分别覆盖 0 和 1, 表明总  $\alpha$ 、总  $\beta$  测量结果与核素含量之间具有良好的相关性和一致性。

### 2.6 环境 $\gamma$ 辐射剂量率与 TLD 累积剂量的一致性

热释光剂量计(TLD)测得的一个月累积剂量值除以一个一个月的小时数, 即为每小时的平均剂量率, 应与  $\gamma$  剂量率仪测量结果相一致。

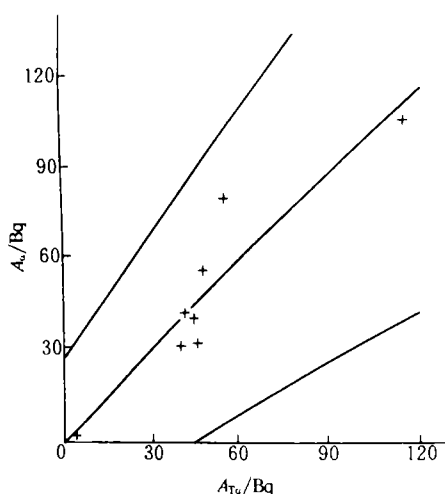


图 3 每千克海藻样品  $\alpha$  核素活度和与总  $\alpha$  相关统计检验图

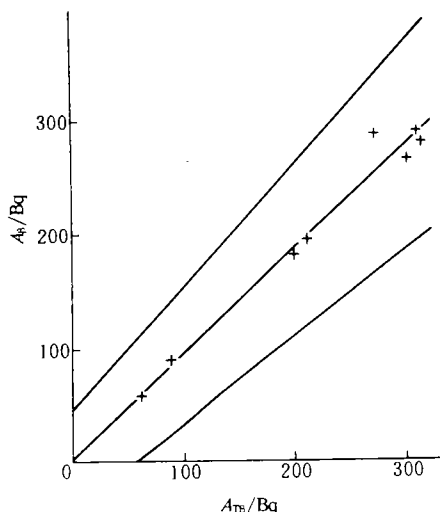


图 4 每千克海藻样品  $\beta$  核素活度和与总  $\beta$  相关统计检验图

图 5 为大亚湾环境本底调查比对点  $\gamma$  剂量率测量值与 TLD 累积剂量测量换算值之间的相关统计检验图。该统计检验的相关系数为 0.992, 回归系数  $\hat{a} = 2.6 \pm 11.3$ ,  $\hat{b} = 0.960 \pm 0.079$ , 分别覆盖 0 和 1, 表明环境  $\gamma$  剂量率测量与 TLD 累积剂量测量之间具有良好的一致性。

### 3 小结

本底调查质控试验数据和调查结果相关统计检验表明,广东大亚湾核电站 1988—1992 年环境放射性本底水平调查质量保证措施严格,数据可靠,具有计量学的可比性。

本报告用线性回归分析法对大亚湾核电站环境放射性本底调查结果进行相关统计检验,讨论了(1) $^{137}\text{Cs}$   $\gamma$  谱测量与放化分析结果的一致性;(2) $^{40}\text{K}$   $\gamma$  谱测量与化学分析结果的一致性;(3)总  $\alpha$ 、总  $\beta$  放射性与核素含量之间的相关性;(4)环境  $\gamma$  剂量率测量与 TLD 累积剂量测量结果的一致性。该方法不但可以检验不同测量方法之间、相关项目之间实验数据的相关性和一致性,还可以判断异常值,讨论数据的取舍,是本底调查质量控制的有效方法之一。同时,也为本底调查结果的质量评价提供依据。

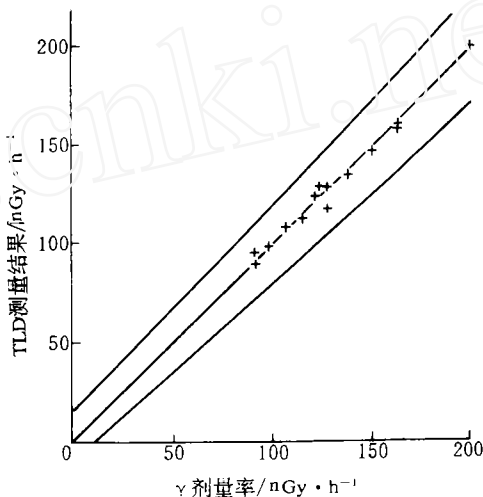


图 5 环境  $\gamma$  剂量率与 TLD 测量结果相关统计检验图

## 参 考 文 献

- 1 GB6249-86. 核电厂环境辐射防护规定. 见:环境辐射监测分析方法及管理标准汇编. 北京:中国标准出版社,1992. 157-161.
- 2 GB8999-88. 电离辐射监测质量保证一般规定. 见:环境辐射监测分析方法及管理标准汇编. 北京:中国标准出版社,1992. 190-193.
- 3 GB11216-89. 核设施流出物和环境放射性监测质量保证计划的一般要求. 见:环境辐射监测分析方法及管理标准汇编. 北京:中国标准出版社,1992. 197-201.
- 4 邓 勃. 数理统计方法在分析测试中的应用. 北京:化学工业出版社,1984. 36-63.
- 5 潘秀荣. 分析化学准确度的保证和评价. 北京:中国计量出版社,1985. 43-47,178-197.

## QUALITY CONTROL AND EVALUATION FOR ENVIRONMENTAL RADIOLOGICAL BASELINE STUDY OF GUANGDONG DAYA BAY NUCLEAR POWER STATION

Lin Bingxing    Zhou Zhifa    Mu Dehai  
(Guangdong Analysis Institute, Guangzhou 510070)

## ABSTRACT

The main points of quality control methods and technique of environmental radiological baseline study of Guangdong Daya Bay Nuclear Power Station are reported. Results of intercalibration of international and inland laboratories are given. The random chosen samples are checked and compared with two measurement methods. The data obtained in Daya Bay environment are put to the correlation statistics test using the liner regression analysis method between the correlative items such as  $^{40}\text{K}$  activity by gamma spectrum measurement and potassium content by chemical analysis, total  $\alpha(\beta)$  activity and nuclide content, as well as environmental gamma radiation dose rate and TLD accumulation dose. The data of Daya Bay environmental radioactivity baseline level show good concordance and reliability.

**Key words**    Guangdong Daya Bay Nuclear Power Station    Environmental radiological baseline study    Quality control    Quality evaluation    Correlation statistical test