

争鸣与探索

放射性环境监测中探测限附近测量数据的处理

沙连茂, 卫为强, 宣义仁

(中国辐射防护研究院, 山西 太原 030006)

摘要: 阐述了探测限的基本概念和对探测限附近的数据处理问题。提出探测限的作用是用来评价检测的能力, 不宜用于常规计数及报告测量结果; 判断限则用于对测量结果在统计上是否与本底有显著差别做出判断, 也不宜用来报告测量结果。当样品净计数大于 (或等于) 判断限时, 不管其是否小于探测限, 都应当报出其测量值及标准差; 当样品净计数小于判断限时, 用小限作为其上置信限报告测量结果; 在对同类样品结果平均时, 无论样品净计数小于判断限, 或大于 (或等于) 判断限, 都应当按其活度实测值 (正、负或零) 参加平均。

关键词: 探测限; 放射性; 环境监测; 数据处理

中图分类号: X83013 **文献标识码:** C **文章编号:** 1006-2009(2006)01-0038-06

Study on Processing Method of Data Near the Lower Limits of Detection for Radiation Environmental Monitoring

SHA Lianmao, WEI Wei-qiang, XUAN Yi-ren

(Chinese Institute for Radiation Protection, Taiyuan, Shanxi 030006, China)

Abstract The processing of data near the lower limits of detection (Ld) for environmental monitoring were discussed based on the basic concepts of the Ld. It put forward that different function of the Ld and the critical level (Lc) should be distinguished. The Ld is used in evaluation of detection capability and not used for routine counting and reporting. The Lc is used to determine if a measurement is statistically different from background and also not used for reporting. For routine counting, if the net count $N > Lc$, the result is reported as positive with the standard deviation (R_s), it does not matter if $N < Ld$. If $N [Lc, \text{less than level (Lt)}$ is calculated and reported as upper confidence interval. If the data are to be averaged, the absolute activities (whether positive, negative or zero) should be recorded and averaged. It does not matter if $N [Lc$ or $N > Lc$.

Key words Detection limit; Radiation; Environmental monitoring; Data processing

在环境放射性监测中, 人们会获得大量最小探测限 (Ld) 附近, 甚至 $< Ld$ 的数据。这类环境监测数据的特征是不对称和混合分布, 连同极端值和低于 Ld 值的存在, 是环境放射性监督数据的通常特征。分析具有这种特征的监督数据和随后的报告是不容易的, 或者说是不能按常规处理的^[1]。

在田湾核电站申请装料许可证阶段的环境辐射本底调查中, 获得了不少低于 Ld 的数据, 低于 Ld 的数据约占总数据量的 60%。如何表达和处理这些数据的初步意见, 在 2002 年 5 月北京召开的 Ld 附近测量数据处理方法专家研讨会上进行了审查, 形成了具体、可操作的方法, 并在田湾核电站环

境辐射本底调查中付诸实施。现在理解 Ld 基本概念的基础上, 结合环境辐射本底调查中处理 Ld 附近数据的几个问题进行讨论。

1 Ld 基本概念

关于 Ld 包括 Ld 的基本概念、定义、公式和使用, 有不少文献都有过严格论述^[2-10], 从 Ld 的定义和公式看, Ld 是在判断限基础上建立起来的, 或者说它是与判断限有关的一个估计量。因此, 在讨

收稿日期: 2005-07-02; 修订日期: 2005-12-13

作者简介: 沙连茂 (1937), 男, 广东兴宁人, 研究员, 从事辐射环境监测工作。

论 Ld 基本概念之前应当理解判断限的基本概念。

1.1.1 判断限与 Ld 的基本概念和作用

判断限 (Limit of decision) 又称判断水平 (Decision level or Critical level) 简称 L_c 、 D_c 或 D_L ，在统计学上，是允许发生第 1 类错误，概率为 A 时判断样品有放射性存在的样品净计数的最小测量值。人们测得样品净计数 $N = N_G - N_B$ 后，必须判断此测量值是否仅由本底计数的统计涨落引起的，还是说明样品含有放射性，即 I_N (净计数真值) 是否大于零。这类问题可由 N 与 $I_N = 0$ 的差别显著性检验判断。选定 L_c 后，当 $N > L_c$ 判 $I_N > 0$ 当 $N < L_c$ 判 $I_N = 0$ 。这时有两种错判的可能：

判 $I_N > 0$ 但实际上 $I_N = 0$ 犯第 1 类错误，用 A 表示 (去真)；判 $I_N = 0$ 实际上 $I_N > 0$ 犯第 2 类错误，用 B 表示 (存伪)。

L_d 是测量装置能发现的最小期望放射性水平，在测量中，当 $N > L_c$ 时，以 $1 - B$ 的把握度推断样品中含有的最小期望放射性水平。 L_d 由 L_c 允许发生第 2 类错误的概率 B 和正态分布 $N (I_N = L_d, \sigma^2)$ 的标准差确定，即：

$$L_d = L_c + U_B \sigma \quad (1)$$

式中： U_B 为标准正态变量，显然， L_d 是 A 和 B 的函数。式 (1) 的含义是：用这一测量装置预期能探测到最小净计数期望值 $I_N = L_d$ 的把握度为 $1 - B$ 。 $1 - B$ 为检验规则的功效，为了以预定的功效判定放射性存在，要求样品活度至少必须等于 L_d 。从式 (1) 可知，当 $L_d = L_c$ 时， $U_B = 0$ $B = 0.5$ 表明探测的最小净计数期望值 $I_N = L_d = L_c$ 的把握度仅为 $1 - B = 0.5$ 。因此， L_c 是置信度为 0.5 的检出界线。

通常取 $B = 0.05$ 此时如果样品的放射性期望值达到了 L_d 那么可以 (事先) 断言，若采用该测量装置，样品的计数结果会有 95% 的概率 $> L_c$ (并不是有 95% 的概率 $>$ 最小可探测计数，或计数率，简称 LLD_N)，而 $< L_c$ 的概率大约是 5% 。

把上述两个概念应用于报警仪器，并定报警阈为 L_c ，则当样品不含放射性时，假报警的概率不大于 A 而当样品放射性等于或大于 L_d 时，漏报警的概率不大于 B 。把 L_c 和 L_d 的概念应用于核设施的环境监测时，从业主等方面考虑，最怕犯第 1 种错误，希望 A 越小越好，但是，从环保部门考虑，却最怕犯第 2 种错误，希望 B 越小越好。

L_c 和 L_d 的作用不同， L_c 通常用于检验测量结

果是否在统计上与本底有显著性差异， L_d 则反映一种特定测量 (包括仪器、方法和样品特征等) 的技术指标，用于评价一种测量的检测能力，它们均不应用于表述测量结果。柴之芳^[11] 认为， L_d 是 / 事前 0 (制定监测方案时) 预定的，而 L_c 则是在获得测量结果的 / 事后 0 用于对测量结果做出判断，对于低水平放射性的常规计数来说，感兴趣的是 L_c 。

1.2 使用简化后 LLD_N 公式的重要条件

下式为计数率的探测下限：

$$LLD_N = 4165 @ \sqrt{n_b / t_b} \quad (2)$$

式中 n_b 是 t_b 时间内平均本底计数率，需要注意其在推导过程中的假设条件：

(1) 本底计数和样品总计数满足或近似满足正态分布。分别用 N_B 、 N_G 和 $N_G - N_B$ 近似作为本底期望值 I_{NB} 、总计数期望值 I_{NG} 和样品净计数期望值 I_N ，一般情况下， N_B 不应当只是仪器的本底计数，而应当是由合适的空白样品获得的计数；

$$(2) A = B = 0.05$$

(3) 样品的净计数比本底计数小，而样品总计数标准差 S_G 等于本底计数标准差 S_b 。否则，以本底计数形式推导 LLD_N 时，严格地说，应当：

$$LLD_N = 4.65 S_b + 2.7057 \quad (3)$$

在 HJ/T 61-2001 辐射环境监测技术规范 6 中，由于有上述假设，把上式右边的数值 2.7057 忽略了，但近年起草的 ISO 文件^[9] 中，它被近似为 3 。实际上，当 $A = B$ 时，它等于 U_A^2 ；当 $A = B = 0.05$ 时， $U_A^2 = 2.7057$ 。

(4) 样品和本底成对测量，且样品测量时间 t_G 和本底测量时间 t_b 相等。在低水平放射性测量中， $t_b > t_G$ 时的探测限至多比 $t_b = t_G$ 情况下降低 $1/2^{1/2}$ ，据此，取 $t_b = t_G$ 是适宜的。当 $t_b \gg t_G$ ， $S_b \gg 0$ 时，可以认为本底准确已知，这时的探测限比 $t_b = t_G$ 时降低 $1/2^{1/2}$ ；

(5) 样品测量时间与本底测量时间足够长，即本底计数 ($n_b @ t_b$) 足够大，其泊松概率分布可分别由正态分布 $N (I_{NG}, R_{NG}^2)$ 和 $N (I_{NB}, R_{NB}^2)$ 来近似。样品净计数 $N = N_G - N_B$ 的概率分布也近似正态分布 $N (I_N = I_{NG} - I_{NB}, R_N^2 = R_{NG}^2 - R_{NB}^2)$ 。当本底计数较小时，两个泊松变量之差 $N = N_G - N_B$ 的概率分布相当复杂，不宜采用正态近似。究竟 N_B 应当大到多少？根据推导过程中的假设条件： $(U_A +$

$U_B) / (N_B)^{1/2} n \geq 1$, 当 $A = B = 0.05$ 可以估计 $N_B m 11$ 。

1.3 Ld 其他表达方式

Ld 在其数学推导过程中, 只是推出了最重要和最基本的 LLD_N , 在实际使用时, 还常有以下两种扩展形式:

(1) 最小可探测量 (Minimum Detectable Amount) 简称 MDA), 它表示在第 1 类误判概率为 A 第 2 类误判概率为 B 条件下能被探测到的样品中被测对象的最小量 (活度或质量);

(2) 最小可探测浓度 (Minimum Detectable Concentration) 简称 MDC), 它表示在第 1 类误判概率为 A 第 2 类误判概率为 B 条件下能被探测到的样品中被测对象的最小浓度。

在使用过程应严格区分所使用 Ld 的名称, 不当混淆, 因为名称不同, 其概念、条件或包括的因素也有所不同。 LLD_N 只与仪器或空白样品的本底及测量时间有关; MDA 除了与 LLD_N 有关外, 还与仪器的效率、分支份额和射线的发射几率, 以及待测核素的衰变因子和生长因子等有关; MDC 除了与 MDA 因素有关外, 还与样品量有关。

一般在确定方法 (或方案) 的 MDC 时, 相关因素也确定了。因此, 在提供方法 Ld 时, 不能只给出 Ld 数值, 还要给出它的定义和有关参数。在实际监测中获得的是实际测量条件下的 MDC, 它与方法的 MDC 比较, 小量的变动是难免的, 但是如果引起较大变化, 尤其是其数值从小变大时, 应当引起高度重视。应当把根据合同要求制定的, 环境放射性监测大纲中的各监测项目的 MDC 看成是对任务发包方的承诺, 如果在监测中 MDC 值明显变大, 说明承包方花力气不够, 没有兑现承诺。

1.4 MDC 检验

为检验 MDC 的估计是否恰当, 可以分析若干均匀的、其活度浓度 (X_D) 等于 MDC 的加标样品。如果 MDC 的确定是合适的 (原假设), 则对每个样品来说, 未能测出待测核素的概率最多等于 B 在试验中未能测出结果的数量可以认为是参数 n 和 B 的二项分布。设在实际分析中有 k 次未能测出结果, 则可按下式计算累积二项式概率:

$$P = \sum_{j=k}^n \binom{n}{j} B^j (1-B)^{n-j}; 1 - \sum_{j=0}^{k-1} \binom{n}{j} B^j (1-B)^{n-j} \quad (4)$$

如果检验结果 P 值小于试验所选择的显著性

水平, 则抛弃原假设, 即 MDC 确定不合适。进行检验的重要条件, 是应当保证所用试验样品的物理化学特性 (包括潜在的干扰) 与实际的实验室分析样品一样, 要具有代表性。

例如, 采用控制样品检验, 其 X_D 与 MDC 近似, 取 $B = 0.05$ 如分析的 10 个控制样中有 3 个不能测出结果, 则考虑 MDC 值在 2% 显著性水平下是否低估了? 这时变量 $n = 10, B = 0.05, k = 3$ 根据 (4) 式计算 P 值:

$$P = 1 - \sum_{j=0}^2 \binom{10}{j} (0.05)^j (0.95)^{10-j} =$$

$$1 - 0.9885 = 0.0115$$

由于 $P [0.02$ 故舍弃原假设, 结论是 MDC 被低估了。

1.5 Ld 附近测量数据的有效性

在环境监测中获得的 Ld 附近的测量数据, 常常会不同程度的与本底或空白样品的测量数据相互交叉, 测量数据的有效性可以按某测量系统在当时的测量条件下, 预期能测到最小净计数期望值 $I_N = L_D$ 的把握度 $1 - B$ 来评价。B 在统计学上称为犯第 2 类错误的概率, 即样品实际上含有放射性 ($I_N > 0$), 却被判为不含放射性 ($I_N = 0$) 的概率。若用数学式表示, 则:

$$B = P_{I_N=L_D} \{N < Lc\} = P_{I_N=L_D} \{N < L_D - u_B \# R_D = P_{I_N=L_D} \left\{ \frac{N - L_D}{R_D} < - U_B = \frac{1}{\sqrt{2P_{-j}}} \int_{-u}^0 \exp(-u^2/2) du \quad (5)$$

实际计算时可按下式获得 U_B 值:

$$U_B = (n_s - Lc) / R_s \quad (6)$$

式中: U_B)) 标准正态变量;

n_s)) 样品的净计数率;

Lc)) 判断限;

R_s)) 样品计数测量的标准差。

按式 (6) 计算出 U_B 值后, 便可以在数理统计表中查得 B 值, 从而做出把握度 $1 - B$ 的估计。采用不同测量方案对一个样品计数时获得的 Lc, U_B 和 $(1 - B)$ 值见表 1。

从表 1 看出, 即使净计数率相同, 但由于本底或测量时间不同, 测得结果的把握度也有差别, 在评价结果有效性时必须考虑这一点。

2 处理和表述低于 Ld 数据时存在的问题

对低于 Ld 的数据作处理和报告时, 会存在一些不符合 Ld 基本概念的情况:

表 1 净计数率相同、测量方案不同时的 L_c 、 U_B 和 $(1-B)$ 值

| 编 号 | 本底 / min^{-1} | 测量时间 / min | 净计数率 / min^{-1} | 标准差 / min^{-1} | L_c / min^{-1} | U_B | $1-B$ |
|-----|------------------------|---------------------|--------------------------|-------------------------|---------------------------|-------|-------|
| 1 | 0.5 | 100 | 0.15 | 0.11 | 0.16 | 0.09 | 0.464 |
| 2 | 0.5 | 500 | 0.15 | 0.05 | 0.07 | 1.6 | 0.945 |
| 3 | 0.05 | 500 | 0.15 | 0.02 | 0.02 | 6.5 | U 100 |

(1) 只报告方法的 L_d 是多少, 不说明它的定义、公式, 或说明了 L_d 的计算公式, 但不提供必要的参数, 这种做法不利于相互间的比较和交流, 也不利于对测量结果的有效性评价。

(2) 当测量样品的计数小于 L_d 时, 用 $< L_d$ 表述测量结果。这种做法实际上是把 L_d 当做 L_c 使用, 让 L_d 同时兼有 L_c 和 L_d 两种功能, 忽略了 L_c 的作用。在执行过程中还存在的问题:

由于计数统计涨落, LLD_N 并不是一个常数, 而是一个统计学的估计量, 假设样品活度真的达到了 LLD_N , 实际测量值会在大约 $LLD_N \pm 3R_p$ 范围内波动。也就是说, 即使样品多次测量的平均计数率等于 LLD_N , 单次测量值也还会有 50% 概率 $< LLD_N$, 如果都计为 $< LLD_N$ 似乎不太合适, 因为它还有可能会出现 $> LLD_N$ 的情形; 在实际测量中常常会出现数据 $> L_c$ (如 2.33 倍本底标准差), 却 $< LLD_N$ 现象, 表明它已经以较大的置信度提供了有放射性存在的信息, 但却被判为 $< LLD_N$, 让人错误地以为没有测到放射性, 这种做法已受到国内外的批评^[12, 13]。

(3) 报告结果时, 不考虑测量的计数值是否高出判断限, 而是把最终经过各种校正的, 以活度浓度为单位的的结果与事先估计的 L_d 值 (以活度浓度为单位) 作比较, 若 $> L_d$ 则报出; 若 $< L_d$ 则不报或报 $< L_d$ 。例如, 若根据 / 事前 0 估计 L_d 的方法, 当降水中 ^3H 的 L_d 为 0.35 Bq/L 时, 其主要的条件是电解浓集因子 9.45, 液闪测量取样体积 8.0 mL, 本底 2.76 min^{-1} , 测量时间 1000 min, 探测效率

15%。列出 2 个降水中 ^3H 的测量结果, 见表 2。

表 2 $< L_d$ 的 2 个降水中 ^3H 的计数测量值

| 编 号 | 净计数率 / min^{-1} | L_c / min^{-1} | LLD_N / min^{-1} | 电解浓集因子 | 质量活度 a / $(\text{Bq}\# \text{L}^{-1})$ | $1-B$ |
|-----|--------------------------|---------------------------|-----------------------------|--------|--|-------|
| 1 | 0.24 ± 0.08 ¹ | 0.12 | 0.24 | 10.0 | 0.32 | 0.933 |
| 2 | 0.26 ± 0.08 | 0.12 | 0.24 | 10.5 | 0.33 | 0.960 |

¹ 表中 / ± 号后的数值为 1 倍标准差。

表 2 中其他条件与 / 事前 0 估计基本相同, 但电解浓集因子均 > 9.45 , 分别为 10 和 10.5, 所以尽管它们的净计数率已超过了 L_c 甚至达到或超过了 LLD_N , 但是被较大的电解浓集因子相除以后, 最终结果比估计的 L_d 小 (0.35 Bq/L), 因而不敢报出。所以, 这种做法不仅会漏报一些大于判断限的数据, 甚至还会把实际上已经达到或超过 L_d 的结果, 误认为是 $< L_d$ 。因此, 应该提出一个值得思考的问题: 判断一个样品是否超过 L_d 是应该依据 / 事前 0 估计的 L_d (以样品的活度浓度表示), 还是依据 / 事后 0 的测量结果 (以净计数表示), 显然应当依据后者, 因为 L_d 只是对某种方法探测能力的一种估计, 要具体估计某核素在样品中的 L_d 是有条件的。

(4) 人为规定计数测量误差小于多少 (例如 30%) 的就报出, 否则就不报出。这种做法的错误在于混淆了 L_c 与定量测定限的概念, 把定量测定限当做 L_c 使用, 其结果会使一些大于 L_c 应当报出的结果漏报。

表 3 列出了 4 个被定为 $< LLD_N$ 的海鱼中 ^{137}Cs 的测量数据。测量采用 HPGe C 谱仪, 所测 ^{137}Cs 的能量为 661.7 keV, 发射几率 0.851, 当测量时间 60000 s, 样品灰重 72.9 g, 探测效率 0.0156 和样品加本底的累积计数 (NT) 470 时, L_d 为 1.7 mBq/g 灰。报告人把它们定为 $< LLD_N$ 的理由是它们都未达到预定的 LLD_N 值, 即使计数值超过了 L_c 但它们的计数测量误差超过了 30%。

表 3 海鱼中 ^{137}Cs 的活度被报为 $< LLD_N$ 的有关测量数据

| 编号 | 灰鲜比 /% | 灰重 / g | 测量时间 / s | 净计数 | NT | L_c / min^{-1} | ^{137}Cs 测量值 a / $(\text{mBq}\# \text{g}^{-1})$ | 计数误差 /% | $1-B$ |
|----|--------|-----------------|-------------------|-----|-----|---------------------------|--|---------|-------|
| 1 | 9.29 | 106.1 | 61910 | 103 | 343 | 36.1 | 1.2 | 22 | 0.995 |
| 2 | 3.57 | 82.2 | 61736 | 78 | 456 | 45.3 | 1.2 | 34 | 0.844 |
| 3 | 3.57 | 81.4 | 63394 | 80 | 455 | 45.1 | 1.2 | 34 | 0.869 |
| 4 | 1.60 | 39.6 | 60000 | 61 | 581 | 53.1 | 1.9 | 52 | 0.560 |

从表 3 看出, 这 4 个样品的测量条件(灰重、测量时间和 NT 值等)与上述预定 Ld 时的条件并不相同, 不能以预定的 Ld 划线来决定是否报出结果, 也不能因为有 3 个样品的测量误差超过了 30% 就不报出, 因为也只是对最低测定限的要求, 不能套用。从表 3 可以看出, 测量误差的大小对报出结果的把握度有影响。

(5) 当测量结果 $< L_c$ 时, 报 / 未检出 0、/ = 00、/ $< L_c$ 或 / $< LLD_n$ 0 等, 并且当测量结果需要参与平均等统计处理时, 人为规定均取零、1 L_c 、1 L_D 、1/2 L_D 或 1/10 L_D 值等。显然, 如果报 / 未检出 0, 则基本上没有提供任何测量信息, 是一种不负责任的报告方式; 若报 / = 00, 并且以零参与平均, 会使平均值偏低; 若报 / $< L_c$ 或 / $< LLD_n$ 0, 也是违反数理统计规律的; 如取 1 L_c 或 1 L_D 相应数据参与平均, 会使平均值偏高; 同理, 若人为规定它们均为 1/2 L_D 或 1/10 L_D 值, 都不是对这类测量结果的无偏估计, 均存在人为的主观因素。因此, 随着 $< L_c$ 的数据在全部数据中所占的比例越高, 对结果的影响也越大。

近年来, 美国环境保护局^[14]对低于 Ld 的数据(在全部数据中占 3 种不同比例)分别采用不同的处理方法: 当低于 Ld 数据的比例 $< 1\%$ 时, 采用替代法, 即用 Ld/2、Ld 或非常小的数值替代低于 Ld 的数据; 当低于 Ld 数据的比例在 $1\% \sim 50\%$ 时, 选用适当的方法调整测量数据的平均值; 当低于 Ld 数据的比例 $> 1\% \sim 90\%$ 时, 采用比例检验法。

对低于 Ld 的数据在全部数据中按不同比例分别处理是可取的, 但是将测量数据以 Ld 划线, 似乎混淆了 Ld 与 Lc 的功能, 同时, 这种处理方法或多或少带有人为主观因素。

如何处理 $< L_c$ 的数据, 应当从两个层次考虑: 一是如何报告这类结果; 二是如何将它们参与进一步的平均统计处理。关于如何报告这类结果, 美国能源部环境测量实验室按 / 零水平 0 推导出了表述方法^[6], 即当长时间测量后, 样品和本底均为零计数时, 报 $< 3/\sqrt{E}$, 式中 t 为测量时间, E 为探测效率。另外, 美国 NBS 也提出了方法, 即报小于水平 L_t ^[5]:

$$L_t = R + K R_B \quad (7)$$

式中 R 为样品的净计数率; K 为单侧置信因子, 在 99% 的置信度下 $K = 1.65$ 。此法具有严格的统计学依据, 报出的水平与测量结果 / 挂钩 0, 在 20

世纪 80 年代, 我国对食品放射性水平调查数据处理时^[14]曾采用这种方法。

3 处理 Ld 附近数据的基本考虑

3.1 基本原则

在处理 Ld 附近数据时, 会遇到很多复杂问题, 故应当遵守一些基本原则:

(1) Ld 只用来评述一种检测能力, 不应当用于表述测量结果, 尤其是对 C 谱那样的没有固定探测下限的测量;

(2) 要根据测量值(净计数或净计数率)是否 $\setminus L_c$ (而不是 $\setminus LLD_n$) 决定报告结果方式: 当净计数 $N \setminus L_c$ 时, 不管其是否 $< LLD_n$ 都要报出测量值及标准差, 这时报出结果的把握度 $(1 - B)$ 约为 $50\% \sim 99\%$; 当 $N < L_c$ 时, 用上置信限(即小于水平或小于限)表示, 这是对具体测量结果做出的估计;

(3) 由于计数测量统计误差的存在, 净计数出现零或是负值都是合理的, 是可以进一步参加平均的, 为此所有原始数据都不能丢失, 应当保存备用, 并且要尽可能把样品保存下来;

(4) 要明确所采用 Ld 与 Lc 的定义和应用条件, 要区分测量一个和若干个样品平均值的 Ld 及 Lc 的差别;

(5) 在对平行样或同类样品的结果平均时, 无论 $N < L_c$ 还是 $N \setminus L_c$ 都应按其活度本值(即实测值)平均;

(6) 在报告 Ld 附近数据时, 必须说明所采用 Ld 和 Lc 定义、公式和必要的参数。

3.2 步骤

(1) Lc 的确定。在本底准确值未知的情况下, $A = 0.05$ 时, $L_c = 2.33 R_B$ 。式中 R_B 为本底计数或计数率的标准差, $R_B = (n_B / t_B)^{1/2}$;

(2) 净计数 $N \setminus L_c$ 时测量结果的表示。首先计算净计数率及标准差, 当样品测量时间 t_s 和本底测量时间 t_B 相等时, 即 $t_s = t_B = t$ 则可表示为:

$$n_s \pm [(n_s + 2n_B) / t]^{1/2} \quad (8)$$

式中: n_s) 样品的净计数率;

n_B) 本底的计数率;

t) 样品的测量时间。

然后将净计数率及其标准差分别乘 / 除以适当的校正因子(如探测效率、射线几率、分支比、化学回收率、衰变或生长因子等), 变成活度或活度浓

度。报出这类结果时应当明白, / ? 0 号后的数值不包括全部的误差因素, 仅仅是计数测量的统计误差;

(3) $N < L_c$ 时, 小于水平 L_t 的计算及数据的处理。先按式 (6) 计算计数结果的 L_t 值:

$$L_t = n_s + K [(n_s + 2n_B) / t]^{1/2} \quad (9)$$

再将 L_t 值 (计数率) 乘 除以适当的校正因子 (如探测效率、射线几率、分支比、化学回收率、灰鲜比、衰变或生长因子等), 得出活度或活度浓度作为报告值, 它表示样品在 95% 置信度下的活度或活度浓度的上置信限水平;

(4) 平行样或同类样品结果平均值的计算。一般情况下, 不同样品的测量条件 (如测量时间、样品量、探测效率、回收率、灰鲜比、衰变或生长因子等) 不可能完全相同, 各样品的测量结果参与进一步的平均时, 应当取其活度或活度浓度的本值 (包括实测的负值和零值)。尤其对 $N < L_c$ 按小于水平 L_t 报告的结果, 均不以 $L_t/2$ 、 $L_t/10$ 或 $L_D/2$ 、 $L_D/10$ 参与平均。由于取其活度或活度浓度的本值比较繁琐, 可以取 L_c 值 (相当于 $1/2 L_d$), 当测量条件基本相同时, 可以考虑各测量值等权参与平均。如果超过 L_c 数据的比例足够大, 可在概率纸上作图, 依据它们的分布特性估计期望值^[6], 作图时只用 $> L_c$ 的数值及相应的累积频率。另外, 作图用的点位数应超过 10 个, $< L_c$ 数据所占的比例不能超过 $1/3$ 。

(5) 对全部结果均低于 L_c 的特殊处理。当计数结果均低于 L_c 时, 可根据具体情况采取特殊措施, 尽量采用反映实际测量结果的信息, 如:

1 一般情况下不列表, 只在报告中说明其 L_d 是多少, 有多少样品未测出。

2 有必要对一些重要核素的少数样品, 在增加了样品量和测量时间等条件时, 给出实际可能的数值。

3 如果可以认为是来自同一总体, 可根据实际测量值的平均值与新平均值的 L_c (以活度或活度浓度表示) 作比较, 若平均值大于新的 L_c 就报平均值及其标准差; 若小于新的 L_c 就报平均值的上置信限。在处理 $N < L_c$ 测量数据时还需注意:

带 / < 0 号的 L_t 报告值, 在数值上与活度浓度的实测值是不同的, 但对于 $N > L_c$ 来说, 两者是相同的; 在一组数据中若含有 $N < L_c$ 的测量数据, 活度浓度实测值不写入报告, 但要作为原始数据存入计算机中备用; 带 / < 0 号的 L_t 报告值以活度浓度表示时, 有可能在数值上会出现 $N \setminus L_c$ 的样品报告值, 因为计算方法不同, L_t 值按式 (6) 计算, 比 $N \setminus L_d$ 时的净计数率多出 $K [(n_s + 2n_B) / t]^{1/2}$ 一项。另外, 测量时间、本底及其他条件或校正因子可能不同, 但必须指出, 在相同条件下, L_t 值绝不当超过 L_d 值。

[参考文献]

- [1] 美国能源部 1 美国能源部设施环境放射性监督导则 [A] 1 潘自强, 罗圆楨, 白光, 等. 国外辐射防护规程汇编 5 [C]. 北京: 国务院环境保护委员会办公室, 1981
- [2] PASTERNAK B S HARLEY N H. Detection limits for radionuclides in the analysis of multicomponent gamma ray spectrometer data [J]. Nuclear Instruments and Methods 1971, 91: 533
- [3] 王亦兵. 统计学初步知识及其在放射性测量中的应用 [J]. 核防护, 1977 (3-4): 1
- [4] 高玉堂. 环境监测常用统计方法 [M]. 北京: 原子能出版社, 1981
- [5] LOCHAMY J C. The minimum detectable concept [J]. NBS 75th anniversary symposium, 1981.
- [6] HERBERT L VOLCHOK E D. EML Procedures Manual [J]. 26th Edition HASL- 300, 1983.
- [7] 李德平. 数理统计学讲义 (理工科研究生用) [M]. 太原: 辐射防护通讯编辑部, 1988 61- 62
- [8] 李德平, 胡逢全. 置信区间与探测下限 [J]. 辐射防护, 1994, 14(4): 303- 312
- [9] ISO /DIS 12790- 1 Radiation protection - Performance criteria for radiob iassay- Part 1: General principles [S].
- [10] 胡逢全. 探测下限 L_d [R]. 深圳: 大亚湾核电站, 2001
- [11] 柴之芳. 活化分析基础 [M]. 北京: 原子能出版社, 1982 320 - 323.
- [12] 夏益华, 陈 凌. 对辐射环境监测中某些关注问题的讨论 [J]. 辐射防护, 2002, 22(4): 240.
- [13] 诸洪达, 沙连茂. 质量控制和数据处理 [A]. 张景源 1 中国食品放射性所致内剂量 [C] 1 北京: 中国环境科学出版社, 1989 22- 35.
- [14] EPA QA /G - 9 QA00 VERSION Guidance version for Data Quality Assessment Practical Methods for Data Analysis [S].