

核素氚导出空气浓度控制限值的发展及其 应用研究

吴友朋 温伟伟 程金星 王庆波 于艾 高鑫 耿志强

(中国人民解放军96901部队 北京 100096)

摘要 氚是核设施运行过程中释放的放射性物质之一,对人体的内照射危害不仅与其活度有关,而且与氚的化学形态、摄入途径密切相关。针对目前国内涉及氚的控制标准较多,氚化水(HTO)与元素氚(HT)的控制限值均存在不一致的问题,梳理分析了氚浓度控制限值的发展及相关标准的制定依据。根据我国现行辐射防护有关标准,结合国际原子能机构(International Atomic Energy Agency, IAEA)和国际放射防护委员会(International Commission on Radiological Protection, ICRP)出版物中最新的核素氚生物剂量学参数,重新计算了氚的导出空气浓度(Derived Air Concentration, DAC)与水中活度浓度的控制限制值,以期为辐射防护管理标准制定提供参考,并对控制限值的适用对象进行了明确的区分,控制限值的适用对象是人而非设施设备。

关键词 氚化水(HTO), 元素氚(HT), 导出空气浓度, 控制限值, 内照射

中图分类号 TL72

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2021.hjs.44.020602

Development and application of control limits of derived air concentration for tritium

WU Youpeng WEN Weiwei CHENG Jinxing WANG Qingbo YU Ai GAO Xin GENG Zhiqiang

(Unit 96901 of the PLA, Beijing 100096, China)

Abstract [Background] Tritium is one of the radionuclides released during the operation of nuclear facilities. The radiation hazard of tritium to human body is internal exposure, which is not only related to the activity of tritium, but also closely related to the chemical form and intake route of tritium. In view of the current standards involving tritium, there is an inconsistency in the control limit of tritiated water (HTO), as well as elemental tritium (HT). [Purpose] This study aims to derive and standardize the concentration limits of HTO and HT, as well as the discharge activity concentration limits of HTO. [Methods] The development of tritium concentration control limits and the basis for the formulation of relevant standards were analyzed. According to the current radiation protection standards of China, combined with the latest biodosimetry parameters of tritium in publications of International Atomic Energy Agency (IAEA) and International Commission on Radiological Protection (ICRP), the control limits of derived air concentration (DAC) and water activity concentration for tritium were recalculated. When calculating the recommended limit of air concentration derived from HTO, the skin absorption was converted into the inhalation, and the complete skin absorption was set to half of the inhalation. [Results] Since the dose conversion coefficient used in the current standard is close to that in the new international publications, the recommended limits of HTO are slightly smaller than that specified in the standard, and the corresponding values are basically in the same order of magnitude. [Conclusions] The derived results can provide reference for the standard formulation of radiation protection management. The applicable objects of control limits are also clearly exhibited and distinguished. These objects are only available for people, not for facilities or equipment.

第一作者: 吴友朋, 男, 1980年出生, 2011年于第二炮兵工程学院获博士学位, 研究领域为核辐射监测与评估

收稿日期: 2020-07-20, 修回日期: 2020-11-26

First author: WU Youpeng, male, born in 1980, graduated from The Second Artillery Engineering College with a doctoral degree in 2011, focusing on nuclear radiation monitoring and assessment

Received date: 2020-07-20, revised date: 2020-11-26

Key words Tritiated water (HTO), Elemental tritium (HT), Derived air concentration, Control limit, Internal exposure

氚是氢的一种放射性同位素,也是一种广泛存在于自然界中的天然放射性核素。环境中氚的主要来源有两个途径:天然产生和人工产生。天然氚主要源于大气上层宇宙射线的中子和质子与大气中的氮、氧等原子的相互作用,其中份额最大的反应是快中子与大气中 ^{14}N 的反应产生氚。人工氚主要来自于核动力反应堆、核武器试验、乏燃料后处理,以及其他特殊涉氚行业产生少量的氚。每年大气中天然产生的氚总量约为200 g^[1]。环境中氚的存在形式主要是氚化水(HTO),约占99%以上,其他形态有氚化氢(HT)、氚化甲烷(CH_3T)、有机结合氚(Organically Bound Tritium, OBT)等,自然界中的氚约有99.78%存在水圈中^[2-3]。氚的半衰期为12.32 a,衰变方式为 β 衰变,释放的 β 粒子的最大能量为18.6 keV,平均能量为5.7 keV。该 β 粒子在水或软组织中的最大射程约为5 μm ;在空气中的最大射程约为5 mm,平均射程为0.36 mm;在皮肤中的最大射程为6.0 μm ^[4]。这个穿透深度使得氚对于人体的外照射危害几乎为零,因此体外的氚不会对人体造成辐射损伤,但却存在难以探测的问题,只能将其直接引入到探测器或计数器中才能被测量到。

以HTO和氚气(元素氚,通常用HT表示)形态存在的氚具有很强的扩散、渗透和吸附能力。HTO可通过吸入、皮肤吸收(液体和蒸气)、摄入水或食物途径进入人体,造成内照射危害^[5-8]。无论HTO以何种形式被人体吸收,均会在1~2 h内分布于体内所有含水的组织和器官中,且表现出和水相似的滞留特性,而HT则是通过氧化、交换反应后参与人体新陈代谢过程。人体对HTO的吸收能力比对HT大4个数量级,相同的氚摄入量时HTO对人体的危害比HT大得多。HTO在人体内半排期约为10 d, OBT的半排期约为30 d,存在于脂肪或胶原质中的有机氚半排期长达300~600 d^[9]。与HTO相比, OBT在人体内的滞留时间更长,剂量转换因子更高,危害更严重。国际辐射防护委员会(International Commission on Radiological Protection, ICRP) ICRP 134号出版物^[10]给出HT在生物体内的剂量转换因子为 $2.0 \times 10^{-15} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$, HTO为 $2.0 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$, OBT为 $4.2 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ 。也有研究建议HTO剂量转换因子为 $4.0 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$, OBT为 $9.0 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$,这是目前ICRP建议值的两倍^[11]。因此人们更关注的是HTO和OBT对机体的辐射危害,尤其是进入DNA分子中形成的不可交换有机结合

氚(NE-OBT)更新缓慢,对人体危害更大。对于氚的生物效应研究表明,HTO对机体构成的辐射危害有急性放射损伤效应、生殖效应、致癌效应以及对后代的生长发育影响等非随机性效应。对氚致癌效应、遗传效应及生殖效应等研究证明,氚粒子的辐射权重变化范围在1.7~2.4^[12-13]。

目前国内涉及氚的控制标准较多,但各标准由于推导条件不同,给出的氚的导出空气浓度、排放活度浓度都不一致,给实际使用带来了困难。本文在梳理现有氚的控制标准的基础上,分析各标准中控制限值的推导依据;基于国际原子能机构(International Atomic Energy Agency, IAEA)和国际放射防护委员会最新关于生物动力学模型、剂量学模型的研究成果,重新计算了核素氚的导出空气浓度与排放活度浓度的控制限制值,可作为下一步标准修订的依据。同时对于控制限值的适用对象进行了明确的区分。

1 氚控制限值的发展

1.1 氚控制限值制定的依据

1996年,IAEA等6个国际组织共同制定了《国际电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准》(IAEA安全丛书115号)^[14]。根据此安全标准并结合国家实际情况,我国制订发布了《GB18871—2002 电离辐射防护与辐射源安全基本标准》,该标准等效采用了《国际电离辐射防护和辐射源安全的基本安全标准》,其剂量限值的基本依据是ICRP第60号建议书和第65号、第66号、第68号、第73号、第75号、第82号出版物^[15-21]。但GB18871—2002只给出了工作人员和公众的剂量限值($20 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$ 和 $1 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$),及其单位摄入量的待积有效剂量 $e(g)$,并没有直接给出导出空气浓度(Derived Air Concentration, DAC)、导出食入浓度(Derived Ingestion Concentration, DIC)和排放限值,这给实际管理工作带来了不便。2007年ICRP批准了其修改的放射防护体系建议书,作为ICRP第103号出版物^[22],取代第60号出版物。在ICRP第103号出版物中有关剂量限值的建议与第60号出版物的建议相同,没有明显的改变。最新的国际基本安全标准是2014年IAEA等8个国际组织联合制定的《国际辐射防护和辐射源安全:基本安全标准》(IAEA安全标准丛书第GSR Part 3号)^[23],该标准以ICRP 103号出版

物为依据,可以作为制定剂量限值的新的遵循^[24]。

国内的控制标准多以 ICRP 30 号^[25]和 ICRP 60 号出版物为基础制定,但各标准给出的控制限值并不统一,表 1 汇总了氚控制限值的相关标准,包括:《GB4792—84 放射卫生防护基本标准》、《GB8703—88 辐射防护规定》、《EJ850—94 氚内照射监测大纲的最低要求》、《GBZ 129-2016 职业性内照射个人监测规范》以及 GJB803—90 和 GJB1368A—2015,给出了工作人员和公众成员的氚导出空气浓度限值(表格中“—”表示该值缺省,下同)。目前仅后三个

标准现行有效,放射性工作人员氚化水导出空气浓度限值在 $3.2 \times 10^5 \sim 1.3 \times 10^6 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 公众的氚化水导出空气浓度限值在 $3.8 \times 10^3 \sim 1.5 \times 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 水中(或食入)氚控制浓度在 $7.0 \times 10^4 \sim 7.4 \times 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$, 这些控制限值要求虽有差异,但均在同数量级范围之内;而对于元素氚的控制限值,对放射性工作人员导出空气浓度限值在 $8.3 \times 10^6 \sim 5 \times 10^9 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, 最大值和最小值相差近三个数量级。这些控制限值的统一,特别是对元素氚的较大差异,令标准使用者无所适从,值进一步深入思考与分析。

表 1 氚控制限值相关标准汇总
Table 1 Standards related to tritium control limits

相关标准 Related standards	氚导出空气浓度限值 Control limits of DAC of tritium / $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$				水中氚控制浓度 Control limit of tritium in water / $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$
	职业人员 Worker		公众成员 Public		
	氚化水 HTO	元素氚 HT	氚化水 HTO	元素氚 HT	
GB4792—84	8.1×10^5	2.1×10^{10}	1.9×10^4	4.8×10^8	3.7×10^5
GB8703—88	8.0×10^5	2.0×10^{10}	—	—	—
EJ850—94	8.0×10^5	—	—	—	—
GJB803—90	3.2×10^5	—	3.8×10^3	—	7.4×10^4
GJB1368A—2015	1.3×10^6	8.3×10^6	1.5×10^4	4.6×10^4	7.0×10^4
GBZ129—2016	5.0×10^5	5.0×10^9	—	—	—

在 ICRP 第 30 号、第 60 号、第 103 号出版物中均给出了核素在空气中或水中的导出浓度限值的推导方法。对于氚的导出空气浓度限值,由年摄入量限值(Annual Limits on Intake, ALI)(Bq)除以参考人年吸入空气体积得到,而参考人的 ALI 等于其有效剂量的年剂量限值(Dose Limits, DL)与其同一期间内单位摄入量放射性核素氚所致的待积有效剂量

$e(g)$ 的商。上述计算参数的来源与选取直接关系到氚控制限值,表 2 汇总氚控制限值相关标准到处过程中参数的取值。需要指出的是计算参数最终都是来源于 ICRP 出版物,而在早期 ICRP 出版物中均没有给出元素氚的相关参数,为方便比较表 2 中所列参数都是针对氚化水。

表 2 氚化水控制限值相关标准计算参数
Table 2 Calculation parameters of HTO control limits

相关标准 Related standards	DL / mSv		$e(g) / \text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$		工作人员 Worker's ALI / Bq		数据来源 Data resource	考虑皮肤吸收 Consideration for skin absorption
	职业 Worker	公众 Public	吸入 Inhalation	食入 Ingestion	吸入 Inhalation	食入 Ingestion		
GB4792—84	50	5	1.7×10^{-11}	1.7×10^{-11}	2.9×10^9	2.9×10^9	ICRP30 Publication	是 Yes
GB8703—88	50	1	1.7×10^{-11}	1.7×10^{-11}	3.0×10^9	3.0×10^9	ICRP30 Publication	是 Yes
EJ850—94	50	1	1.7×10^{-11}	1.7×10^{-11}	3.0×10^9	3.0×10^9	ICRP30 Publication	是 Yes
GJB803—90	20	1	1.8×10^{-11}	1.8×10^{-11}	1.2×10^9	1.2×10^9	ICRP60 Publication	是 Yes
GJB1368A—2015	20	1	6.2×10^{-12}	1.8×10^{-11}	3.2×10^9	1.2×10^9	ICRP60 Publication	没有 No
GBZ129—2016	20	1	1.8×10^{-11}	1.8×10^{-11}	1.2×10^9	1.2×10^9	ICRP60 Publication	没有 No

通过表 2 可以看出,前三个标准采用的是 ICRP 30 号出版物参数,后三个标准采用的是 ICRP 60 号出版物参数;前三个标准已失效,后三个标准现行有效,放射性将工作人员和公众的年剂量限值都统一为 20 mSv 和 1 mSv。GJB1368A—2015 严格按照 GB18871—2002 给出的吸入和食入参数计算,而

GBZ129—2016 和 GJB803—90 都是选取了数值更高的食入参数计算。上述各标准关于是否考虑皮肤吸收也没有做到统一,早期发布的 4 个标准均考虑了皮肤对氚的吸收,而近期发布的两个标准未考虑皮肤吸收。这些都是导致最终的控制限值难以统一的原因。

1.2 基于ICRP 30号出版物的氙控制限值

根据ICRP 30号出版物,我国1984年制定发布了《GB4792—84放射卫生防护基本标准》,其规定了核素氙的摄入量限值与导出浓度,并给出了ALI、DAC和DIC的计算方法,三者均是根据放射工作人员和公众个人的年有效剂量限值按照一定的模式推导出,方法如下:

1)放射工作人员和公众的年有效剂量限值分别为 $50 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ 和 $5 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ 。

2)放射工作人员(Worker)的DAC计算方法: $\text{DAC}_w = \text{ALI}_w / (40 \times 50 \times 60 \times 0.02) (\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3})$,设定放射工作人员每年50工作周、每周40 h,每分钟吸入空气量为 0.02 m^3 ;适用于公众(Public)的DAC计算按照 $\text{DAC}_p = \text{ALI}_p / (8\ 760 \times 60 \times 0.02) (\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3})$,公众按照每年8 760 h计算。

3)对于职业照射,按照ICRP 30号出版物推荐模型,通过皮肤吸收的氙摄入量与通过呼吸的吸入量之比为0.5,计算出氙的 $\text{DAC}_w = \text{ALI}_w / (1.5 \times 2\ 000 \times 60 \times 0.02) (\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3})$ 。DIC包括饮水和食物,按每天食入量2.2 kg计。

同样根据ICRP 30号出版物,我国于1988年制定发布了《GB8703—88辐射防护规定》,其规定的核素氙的导出空气浓度限值见表1。该标准中核素氙的ALI、DAC和DIC的导出模式与GB4792—84的方法相同,其规定放射性工作人员的氙年摄入(吸入和食入)限值为 $3 \times 10^9 \text{ Bq}$,因此两个标准导出的氙控制浓度限值也基本一致。但由于GB8703—88规定公众个人的年有效剂量限值为 $1 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$,因此按照相同的计算模式,公众人员的氙控制限值应为GB4792—84相应值的1/5。

核行业标准《EJ850—94氙内照射监测大纲的最低要求》基于GB8703—88制定,其等效采用

GB8703—88规定的氙化水(HTO)年摄入量限值和导出空气浓度值,分别为 $2.9 \times 10^9 \text{ Bq}$ 和 $8 \times 10^5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 。同样基于GB8703—88,我国制定发布了GJB1368—92,在放射性工作人员的氙年摄入(吸入和食入)限值为 $3 \times 10^9 \text{ Bq}$ 的基础上,推导给出工作场所氙化水和气态氙的DAC(工作 $2\ 000 \text{ h}\cdot\text{a}^{-1}$)分别为 $1.3 \times 10^6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $8.3 \times 10^6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;而非限制区氙化水和元素氙的DAC分别为 $6.9 \times 10^3 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $4.6 \times 10^4 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 。该标准于2015年重新修订后发布。

1.3 基于ICRP 60号出版物的氙控制限值

2002年,依据《国际电离辐射防护和辐射源安全基本安全标准》和ICRP 60号出版物,充分考虑我国实施现行辐射防护基本标准的经验和实际情况,制订发布了《GB18871—2002电离辐射防护与辐射源安全基本标准》,其技术内容与上述国际组织标准等效。该标准发布后同时取代GB4792—84和GB8703—88。GB18871—2002的附录B给出了工作人员和公众成员的食入和吸入单位摄入量所致的待积有效剂量 $e(g)$,其中成人氙的单位摄入量所致的待积有效剂量(亦称为剂量转换系数)详见表3。食入单位摄入量所致的成人(不区分工作人员和公众成员)待积有效剂量,对氙化水为 $1.8 \times 10^{-11} \text{ Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$,对有机结合氙(OBT)为 $4.2 \times 10^{-11} \text{ Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$ 。公众成人吸入氙化水单位摄入量的待积有效剂量,对F类为 $6.2 \times 10^{-12} \text{ Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$,对M类为 $4.5 \times 10^{-11} \text{ Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$,对S类为 $2.6 \times 10^{-10} \text{ Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$ 。该标准中未具体给出元素氙职业照射吸入剂量转换系数,但根据ICRP 68号出版物,参考吸入单位摄入量放射性核素后经过50 a所致的待积有效剂量,给出了吸入可溶性或活性气体与蒸汽(氙及其主要化合物)之单位摄入量所致的待积有效剂量,详见表3中工作人员吸入的剂量转换系数。

表3 工作人员和公众成员成人吸入和食入单位摄入量所致的待积有效剂量 $e(g)$ ($\text{Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$)
Table 3 Dose conversion coefficient due to intake of inhalation and ingestion by worker and public $e(g)$ ($\text{Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$)

核素 Nuclide	工作人员 Worker		公众成员 Public		沉积 Deposition / %
	吸入 Inhalation	食入 Ingestion	吸入 Inhalation	食入 Ingestion	
元素氙 HT	1.8×10^{-15}	—	1.8×10^{-15}	—	0.01
氙化水 HTO	1.8×10^{-11}	1.8×10^{-11}	6.2×10^{-12} (F) 4.5×10^{-11} (M) 2.6×10^{-10} (S)	1.8×10^{-11}	100
有机结合氙 OBT	4.1×10^{-11}	4.2×10^{-11}	4.1×10^{-11}	4.2×10^{-11}	100
氙化甲烷 CH_3T	1.8×10^{-13}	—	1.8×10^{-13}	—	1

注:类别F、M和S分别表示肺快速、中速和慢速吸收

Notes: Types F, M and S correspond to fast, moderate and slow absorption rates

由于GB18871—2002未直接给出氙空气导出浓度限值,给实际应用带来居多不便。2016年,我

国制定发布了《GBZ129—2016职业性内照射个人监测规范》,该标准中职业人员的氙空气导出浓度限

值的导出方法与ICRP 30号出版物的模式相同,计算参数也基本一致,区别在于待积有效剂量 $e(g)$ 。计算得到不同形态氚的控制限值,氚化水为 $5 \times 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$,蒸汽或气态氚为 $5 \times 10^9 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$,有机结合氚为 $2 \times 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 。该标准参考IAEA 37号安全报告,认为DAC不适用于皮肤吸收的情况下,故未考虑皮肤对氚的吸收^[26]。

部队根据自身使用特点,也制定了相应的标准,现行性有效的标准包括GJB803—90和GJB1368A—2015。1990年,根据ICRP第60号出版物规定的放射工作人员全身均匀照射20 mSv和公众成员全身照射1 mSv的限值,我国制定发布国家军用标准GJB803—90,给出了放射工作人员的年摄入量限值和 workplaces 的导出空气浓度,具体见表1,其食入和吸入的年摄入量限值ALI均为 $1.2 \times 10^9 \text{ Bq}$,食入和吸入单位活度剂量转换系数为 $1.7 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ 。该标准在取值时考虑了最严格的情况。

基于GB18871—2002,2015年,我国对GJB1368—92进行了修订,最明显的差别在于对放射性工作人员的年有效剂量限值由 $50 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$ 修订为 $20 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$,由此根据 $\text{ALI}=0.02 \text{ Sv}/(6.2 \times 10^{-12} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1})=3.23 \times 10^9 \text{ Bq}$,计算出了放射性工作人员的氚化水年摄入量限值,此剂量转化系数的选用有待商榷;而对于工作人员,元素氚的DAC则是引用的GJB1368-92中的数据经时间转换后得到,两个数据导出模式不一致。具体控制限值见表2。对于水中氚浓度的控制,则是根据公众的年有效剂量限值 $1 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$ 导出的。

国家标准GBZ129—2016和国家军用标准GJB803-90都是基于ICRP 60号出版物规定的放射工作人员全身均匀照射20 mSv限值,推导出工作场所氚化水的导出空气浓度,对比两个DAC限值,发现前者约后者的1.5倍,原因可能是GBZ129—2016在推导职业人员氚化水的DAC限值时未考虑通过皮肤对氚的吸收,而依据ICRP 30号出版物推荐模

型,将通过皮肤吸收的摄入量与通过呼吸的吸入量之比假定为0.5,未考虑皮肤吸收时导出的DAC刚好为考虑皮肤吸收时导出的DAC的1.5倍。GJB1368A—2015与GBZ129—2016两个标准在计算空气中氚化水控制限值时均没有考虑氚通过皮肤渗透的吸收。

2 氚控制限值标准的应用研究

2.1 氚控制限值的推导

从上述分析中可以看出,内照射剂量系数(即单位摄入量待积有效剂量参数)对于放射防护的实际实施至关重要,其依赖于物理数据和解剖与生物动力学模型。基于ICRP 103号出版物建立完整的职业和公众内照射剂量系数工作已初见成效。2015年,ICRP推出了《放射性核素职业摄入》(Occupational Intakes of Radionuclides, OIR)系列出版物,提供了新的生物动力学模型、剂量系数、监测方法和生物分析数据。该系列出版物包括:第130号出版物(OIR: Part 1),对放射性核素职业内照射、生物动力学和剂量学模型、个人和工作场所监测方法的评价及回顾性剂量评价的一般方面进行了描述;第134号出版物(OIR: Part 2)和第137号出版物(OIR: Part 3)以及将推出的系列出版物(OIR: Part 4和OIR: Part 5),提供个体元素及其同位素的相关信息,包括:工作环境中所见的化学形态信息、主要同位素及其物理半衰期和衰变模式清单、参考生物动力学模型的参数值以及工作场所常见的同位素的监测技术信息,同时还提供了对大多数元素的吸入食入和系统生物动力学数据的评议^[10,27-28]。该系列出版物将取代ICRP 30号系列出版物和第54、68和78号出版物。在ICRP 134号出版物中提供元素氢等提供了上述信息。ICRP 68号和ICRP 134号中关于氚的内照射剂量系数对比见表4,两者对应的值变化很小。

表4 工作人员吸入和食入氚的内照射剂量系数对比($\text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$)
Table 4 Internal radiation dose coefficient of tritium inhaled and ingested by worker in different publications ($\text{Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$)

核素 Nuclide	ICRP 68号出版物 ICRP 68 Publication		ICRP 134号出版物 ICRP 134 Publication	
	吸入 Inhalation	食入 Ingestion	吸入 Inhalation	食入 Ingestion
元素氚 HT	1.8×10^{-15}	—	2.0×10^{-15}	—
氚化水 HTO	1.8×10^{-11}	1.8×10^{-11}	2.0×10^{-11}	1.9×10^{-11}
有机结合氚 OBT	4.1×10^{-11}	4.2×10^{-11}	3.5×10^{-11}	5.1×10^{-11}
氚化甲烷 CH_3T	1.8×10^{-13}	—	5.9×10^{-14}	—

注:1)吸入:OBT的吸收类别为F;对NE-OBT,吸收类别为S, $2.6 \times 10^{-10} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$;2)食入:难溶解的氚, $2.0 \times 10^{-12} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$
Notes: 1) Absorption rate of OBT is type F. Absorption rate of of NE-OBT is types S, and $e(g)=2.6 \times 10^{-10} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$. 2) For relatively insoluble forms of tritium, $e(g)=2.0 \times 10^{-12} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$

在制定和应用氚控制标准时,人员的年剂量限值、内照射剂量系数、吸收类型是关键因素。表1中现行的标准正是在内照射剂量系数、吸收类型两个关键参数的选择不同,导致得到的控制限值不一致。

表5列出了经修正后的氚控制限值。为便于使用,并遵守从严要求,考虑氚化水通过皮肤吸收,同时认为水中氚全部以氚化水状态存在。

表5 修改后氚控制限值与现有标准对比
Table 5 Comparison of modified tritium control limits with corresponding values in existing standards

相关标准 Related standards	氚导出空气浓度限值 Control limits of DAC of tritium / Bq·m ⁻³				水中氚控制浓度 Control limit of tritium in water / Bq·L ⁻¹
	职业人员 Worker		公众成员 Public		
	氚化水 HTO	元素氚 HT	氚化水 HTO	元素氚 HT	
GJB803—90	3.2×10 ⁵	—	3.8×10 ³	—	7.4×10 ⁴
GJB1368A—2015	1.3×10 ⁶	8.3×10 ⁶	1.5×10 ⁴	4.6×10 ⁴	7.0×10 ⁴
GBZ129—2016	5×10 ⁵	5×10 ⁹	—	—	—
建议控制限值 Recommended control limits	2.7×10 ⁵	4.0×10 ⁹	1.4×10 ³	2.1×10 ⁷	6.5×10 ⁴

注:1)职业人员吸收 $e(g)=2.0 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$; 2)公众成员吸收 $e(g)=4.5 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$

Notes: 1) For occupational inhalation, $e(g)=2.0 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$; 2) For public inhalation, $e(g)=4.5 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$

对表5中建议控制限值的计算说明如下:

1)在计算职业人员HTO和元素氚的DAC限值时,选用的是ICRP 134号出版物中相关的剂量转换系数(表4)。

2)研究表明当人体暴露于被HTO污染的大气中时,HTO会通过吸入和皮肤接触进入体内。根据联合国核辐射效应科学委员会(United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR)2016年报告、ICRP 30号出版物及相关文献,设定完整皮肤吸收量为吸入量的一半^[4,25,29],因此在计算HTO导出空气浓度的建议限值时考虑了最严格的情况,将皮肤吸收折算到吸入当中;而皮肤对元素氚的吸收可忽略不计,因此计算其导出空气浓度限值时未计入皮肤吸收途径。

3)对于公众成员吸入氚的待积有效剂量参数,GB18871—2002附录中给出了三种吸入类别的单位摄入量待积有效剂量系数及相应的半排期 τ ,分别为:F(快速, $\tau \leq 10 \text{ d}$)、M(中速, $10 \text{ d} < \tau \leq 100 \text{ d}$)和S(慢速, $\tau > 100 \text{ d}$)。目前研究表明,HTO生物半排期在8~14 d,因此宜选择M呼吸类型单位摄入量待积有效剂量系数 $4.5 \times 10^{-11} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ 作为计算公众吸入氚的剂量系数。ICRP 67号出版物也指出,在没有具体资料时将M类别作为氚(微粒气溶胶)的建议的缺省吸收类别^[30]。理论上氚化水经呼吸系统基本全部被吸收并参与人体循环,职业人员与公众吸入所导致的剂量转换系数不一致,差别可能体现在参与循环方式和生物半排期不同。

2.2 氚控制限值应用分析

元素氚的控制限值要比氚化水的限值低4个数量级,考虑到实际情况的复杂性,若两者无法很好区

分,应当按最严控制原则,认为所有元素氚均已转化为氚化水。这会造成一些误差,有必要从理论分析和测量中,掌握工作场所空气中氚化水和元素氚的含量之比,从而能够更加准确地界定空气中气浓度限值,国内外在多形态氚测量方面已有大量研究^[31-35]。在修订标准时,建议使用ICRP最新出版物的成果,按照表5中建议限值进行控制。在使用现行标准时,建议职业人员的氚化水的空气导出浓度限值按 $3.2 \times 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 进行控制,元素氚则按 $5 \times 10^9 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ 进行控制,两者的区别在于考虑了皮肤对氚化水的吸收。该限值是按职业人员每年工作2000 h、每分钟吸入空气量 0.02 m^3 推导出的,若实际情况与此不同,可根据实际情况进行参数修正,在制定与使用氚的导出空气浓度限值或氚的导出空气浓度报警限值时要考虑实际工作情况。

同时也必须清晰认识到,以上各标准中氚控制限值的计算都是基于放射性工作人员或公众年辐射最大剂量限制给出,通常会给人以只要不超过限值就安全没问题的错误理解。首先,在实际环境中是一个多种射线及放射性物质并存的辐射场,应该综合各种辐射类型所致剂量小于年剂量限制。并且在工作中还常提到约束剂量限制的概念,这就意味着控制限值的进一步降低。通常约束剂量限值定为年有效剂量的1/10,将表5中相应限值调整为原来的1/10进行控制,更加利于实际工作中的辐射防护的实施。

此外,在涉氚设施运行过程中,核辐射监测的目的除了保护人员辐射安全外,也应确保设备、设施的安全,及时发现设备、设施的非正常状态。如果将空气中氚的控制限值作为报警阈值,可能会忽视设备运行期间的异常状态。环境本底中HTO占氚含量

的99%以上,《2018全国辐射环境质量报告》中列出全国空气水蒸汽中氚浓度为 $0.006\sim 0.029\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$,若将空气中HTO的报警阈值设置为 $3.2\times 10^5\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$,则两者相差7个量级。运行中某设备可能处于非正常状态导致空气中氚浓度在本底值和报警阈值之间,而从人员辐射安全标准评价为正常,但实际会因未发现异常事故而造成了漏报。因此应严格区分控制限值的使用对象。

对于在水体中的氚浓度控制,《GB6249—2011核动力厂环境辐射防护规定》明确提出:1)所有核动力堆向环境释放的放射性物质对公众中任何个人造成的有效剂量,每年必须小于 0.25 mSv 的剂量约束值;2)对于内陆厂址,排放口下游 1 km 处受纳水体中总 β 放射性不超过 $1\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$,氚浓度不超过 $100\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 。该标准要求核动力厂对气载及液态流出物中的氚进行监测,未要求对氚进行化学形态的甄别监测。因此在核设施的下游,不仅要考虑排放口的氚浓度,还应考虑下游水体中氚的浓度,实际应用中将表5中现行标准的 $7.0\times 10^4\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 作为控制限值,而GB6249—2011中 $100\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 作为筛选阈值。以上两个值的应用对象是人的辐射防护,而对于贮存氚的核设施,则更需考虑其安全性,要判断氚是否发生泄露,需与当地水体的本底水平作对比进行判断。近年来地表水及地下水中最高氚含量约 $10\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 量级^[36],一旦发现水体中氚浓度明显高于本底水平,则应立即查明原因并采取补救措施。

3 结语

本文梳理了国内主要的涉氚控制标准,对比分析各标准中控制限值的推导依据与过程,并依据IAEA和ICRP出版物中最新的研究成果,对涉氚场所的氚控制限值进行了推导计算,给出了氚水和氚化氢的导出空气浓度限值以及氚水排放活度浓度限值的新的建议值,对于职业人员,HTO和HT的导出空气浓度限值分别为 $2.7\times 10^5\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $4.0\times 10^9\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;对于公众人员,HTO和HT的导出空气浓度限值分别为 $1.4\times 10^3\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 和 $2.1\times 10^7\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;环境水中氚控制浓度为 $6.5\times 10^4\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ 。特别强调的是,控制限值的适用对象是人而非设施设备,若氚监测设备的测量值明显高于本底水平,则应立即采取干预措施。同时对标准的实际应用提出了建议,引用约束剂量限制的概念,合理降低控制限值,尽量降低可能的辐射风险。

参考文献

1 UNSCEAR. Ionizing radiation: Sources and biological

effects[R]. United Nations, New York, 1982.

- 2 Baumgärtner F, Donhaerl W. Non-exchangeable organically bound tritium (OBT): its real nature[J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2004, 379(2): 204 - 209. DOI: 10.1007/s00216-004-2520-6.
- 3 Jeffers R S, Parker G T. Development, description and validation of a tritium environmental release model (TERM) [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2014, 127: 95 - 104. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2013.10.002.
- 4 Hill R L, Johnson J R. Metabolism and dosimetry of tritium[J]. Health Physics, 1993, 65(6): 628 - 647. DOI: 10.1097/00004032-199312000-00003.
- 5 U. S. Department of Energy. Primer on tritium safe handling practices[R]. DOE-HDK-1079-94, Washington D.C., 1994. DOI: 10.2172/10196000.
- 6 Phillips H, Privas E, Dean J L. Evaluation of the response of tritium-in-air instrumentation to HT in dry and humid conditions and to HTO vapor[J]. Fusion Science and Technology, 2015, 67(3): 523 - 526. DOI: 10.13182/fst14-t70.
- 7 Yoshida S, Murata I, Takahashi A. Assessment of tritium behavior in man using a modified three-compartment model[J]. Journal of Nuclear Science and Technology, 2002, 39(4): 316 - 322. DOI: 10.1080/18811248.2002.9715195.
- 8 彭述明, 王和义. 氚化学与工艺学[M]. 北京: 国防工业出版社, 2015: 107 - 125.
PENG Shuming, WANG Heyi. Tritium chemistry and technology[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2015: 107 - 125.
- 9 Boyer C, Vichot L, Fromm M, *et al.* Tritium in plants: a review of current knowledge[J]. Environmental and Experimental Botany, 2009, 67(1): 34 - 51. DOI: 10.1016/j.envexpbot.2009.06.008.
- 10 ICRP 2016. Occupational intakes of radionuclides: Part 2 [R]. ICRP Publication 134, Annals ICRP 45(3/4), 1 - 352. DOI: 10.1177/0146645316670045.
- 11 Harms A V, Jerome S M. Development of an organically bound tritium standard[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2004, 61(2 - 3): 389 - 393. DOI: 10.1016/j.apradiso.2004.03.012.
- 12 Fairlie I. Tritium hazard report: pollution and radiation risk from canadian nuclear facilities[J]. Developmental Biology, 2010, 347(2): 258 - 270. DOI: 10.1016/j.ydbio.2010.08.010.
- 13 花威. 体内氚测量与代谢动力学研究[D]. 苏州: 苏州大学, 2008.
HUA Wei. Investigation on internal tritium measurements and metabolic dynamics[D]. Suzhou: Soochow University,

- 2008.
- 14 FAO, IAEA, ILO, *et al.* International basic safety standards for protection against ionizing radiation and for the safety of radiation sources[R]. Safety Series No. 115, IAEA, Vienna, 1996. DOI: 10.1016/S0304-3894(96)90055-2.
- 15 ICRP 1991. 1990 recommendations of the international commission on radiological protection[R]. ICRP Publication 60, Annals ICRP 21 (1-3). DOI: 10.1088/0952-4746/11/3/006.
- 16 ICRP 1993. Protection against Radon-222 at home and at work[R]. ICRP Publication 65, Annals ICRP 23 (2). DOI: 10.1080/09553009414551371.
- 17 ICRP 1994. Human respiratory tract model for radiological protection[R]. ICRP Publication 66, Annals ICRP 24 (1-3). DOI: 10.1097/00004032-198907001-00032.
- 18 ICRP 1994. Dose coefficients for intakes of radionuclides by workers[R]. ICRP Publication 68, Annals ICRP 24 (4). DOI: 10.1016/S0146-6453(00)80005-6.
- 19 ICRP 1996. Radiological protection and safety in medicine[R]. ICRP Publication 73, Annals ICRP 26 (2). DOI: 10.1016/S0146-6453(00)89195-2.
- 20 ICRP 1997. General principles for the radiation protection of workers[R]. ICRP Publication 75, Annals ICRP 27 (1). DOI: 10.1080/09553008414550561.
- 21 ICRP 1999. Protection of the public in situations of prolonged radiation exposure[R]. ICRP Publication 82, Annals ICRP 29 (1-2). DOI: 10.1016/S0146-6453(00)00009-9.
- 22 ICRP 2007. The 2007 recommendations of the international commission on radiological protection[R]. ICRP Publication 103, Annals ICRP 37 (2-4). DOI: 10.1016/0006-291X(73)90728-6.
- 23 EC, FAO, IAEA, *et al.* Radiation protection and safety of radiation sources: international basic safety standards[R]. IAEA Safety Standards Series No. GSR Part 3, IAEA, Vienna, 2014.
- 24 郑钧正. 国际基本安全标准的演进[J]. 辐射防护, 2015, **35**(6): 356-366, 380.
ZHENG Junzheng. The evolution of international basic safety standards[J]. Radiation Protection, 2015, **35**(6): 356-366, 380.
- 25 ICRP 1979. Limits for intakes of radionuclides by workers [R]. ICRP Publication 30 (Supplement to Part 1), Annals ICRP 3 (1-4). DOI: 10.1016/0146-6453(79)90122-2.
- 26 IAEA. Methods for assessing occupational radiation doses due to intakes of radionuclides[R]. Safety Reports Series No.37, IAEA, Vienna, 2004.
- 27 ICRP 2015. Occupational intakes of radionuclides: Part 1 [R]. ICRP Publication 130, Annals ICRP 44(2). DOI: 10.1177/0146645317734963.
- 28 ICRP 2017. Occupational intakes of radionuclides: Part 3 [R]. ICRP Publication 137, Annals ICRP 46(3/4). DOI: 10.1177/0146645317734963.
- 29 UNSCEAR. Sources, effects and risks of ionizing radiation[R]. United Nations, New York, 2016.
- 30 ICRP 1993. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides - Part 2 ingestion dose coefficients[R]. ICRP Publication 67, Annals ICRP 23 (3-4). DOI: 10.1002/anie.201502548.
- 31 Pointurier F, Baglan N, Alanic G. A method for the determination of low-level organic-bound tritium activities in environmental samples[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2004, **61**(2-3): 293-298. DOI: 10.1016/j.apradiso.2004.03.024.
- 32 Uda T, Sugiyama T, Tanaka M, *et al.* Developments of gaseous water, hydrogen and methane sampling system for environmental tritium monitoring[J]. Fusion Engineering and Design, 2006, **81**(8-14): 1385-1390. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2005.08.077.
- 33 秦来来, 夏正海, 谷韶中, 等. 核设施周围大气中多形态氚的测量[J]. 核技术, 2018, **41**(10): 100604. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.100604.
QIN Lailai, XIA Zhenghai, GU Shaozhong, *et al.* Measurement of atmospheric tritium in different chemical forms in the vicinity of nuclear facilities[J]. Nuclear Techniques, 2018, **41**(10): 100604. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.100604.
- 34 徐庆松, 秦来来, 夏正海, 等. 秦山核电基地大气多形态氚的分布[J]. 核技术, 2019, **42**(7): 070601. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.070601.
XU Qingsong, QIN Lailai, XIA Zhenghai, *et al.* Distribution of atmospheric multi-forms tritium in the vicinity of Qinshan nuclear power plants[J]. Nuclear Techniques, 2019, **42**(7): 070601. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.070601.
- 35 Deng K, Wang L, Xia Z H, *et al.* Tritium concentrations in precipitation in Shanghai[J]. Nuclear Science and Techniques, 2018, **29**(5): 63. DOI: 10.1007/s41365-018-0412-2.
- 36 上官志洪, 黄彦君, 陶云良. 内陆核电厂排放氚的辐射环境影响评价[J]. 辐射防护, 2012, **32**(2): 65-71.
SHANGGUAN Zhihong, HUANG Yanjun, TAO Yunliang. Radiological environmental impact assessment for tritium discharged from inland NPPs[J]. Radiation Protection, 2012, **32**(2): 65-71.