

附件 3

《环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的
测量 γ 能谱法（征求意见稿）》
编制说明

《环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的测量
 γ 能谱法》标准制订课题组

2019年11月

目录

1 项目背景.....	1
1.1 任务来源.....	1
1.2 工作过程.....	1
2 标准制定的必要性分析.....	2
2.1 放射性气溶胶的环境危害.....	2
2.2 相关环保标准和环保工作的需要.....	3
2.3 现行监测分析方法标准的实施情况和存在的问题.....	5
3 国内外相关分析方法研究.....	5
3.1 主要国家、地区及国际组织相关分析方法研究.....	5
3.2 国内相关分析方法研究.....	11
4 标准制定的基本原则和技术路线.....	12
4.1 标准制定的基本原则.....	12
4.2 标准制订的技术路线.....	12
5 方法研究报告.....	13
5.1 适用范围.....	14
5.2 规范性引用文件.....	15
5.3 术语和定义.....	15
5.4 方法原理.....	15
5.5 试剂和材料.....	16
5.6 仪器和设备.....	20
5.7 样品.....	21
5.7.1 采样前准备.....	21
5.7.2 样品采集.....	21
5.7.3 样品制备.....	21
5.8 分析步骤.....	24
5.8.1 γ 能谱仪刻度.....	24
5.8.2 样品测定.....	25
5.9 结果计算与表示.....	25

5.9.1 衰变校正.....	25
5.9.2 样品高度和密度差异校正.....	26
5.9.3 结果计算.....	27
5.10 质量保证与质量控制.....	27
5.10.1 采样过程质量保证与质量控制.....	27
5.10.2 γ 能谱仪性能检查.....	29
5.10.3 样品重复测定.....	29
5.11 注意事项.....	29
6 方法验证.....	30
6.1 方法验证方案.....	30
6.2 方法验证过程.....	31
6.3 方法验证结论.....	31
7 与开题报告的差异说明.....	32
8 标准实施建议.....	32
9 参考文献.....	32
附件 2-1 《环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的测量 γ 能谱法》方法验证报告.....	35

1 项目背景

1.1 任务来源

2017年5月、2018年5月，浙江省辐射环境监测站（辐射环境监测技术中心）签订了制订环境保护标准《环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的测量 γ 能谱法》合同，合同编号为BZ201760，BZ201801，项目分两年实施。

标准由浙江省辐射环境监测站负责制订，辽宁省核与辐射监测中心、江苏省核与辐射安全监督管理中心、山东省辐射环境管理站、广东省环境辐射监测中心、四川省辐射环境管理监测中心站、秦山环境应急监测中心、浙江省辐射环境监测站参与验证实验。

1.2 工作过程

（1）成立标准制订课题组

2017年6月，按照合同的要求，浙江省辐射环境监测站组成标准制订课题组，制订了详细的标准制订计划与任务分工。

（2）国内外相关标准和文献资料调研

2017年6月~10月，对与制订《环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的测量 γ 能谱法》相关的国际禁核组织（CTBTO）、美国、德国、日本、法国以及国内非放的标准和文献资料进行了调研，调研的内容主要包括：①采样装置和采样滤膜性能、采样程序、流量校准、采样质量控制、样品制备；② γ 能谱仪和刻度源性能、刻度过程、样品分析及其质量控制；③结果表示及不确定度评定。此外，还调研了我国辐射环境监测系统目前使用的采样和测量装置主要技术参数。通过国内外相关方法的分析与比较，结合我国辐射环境监测特点，确定标准的适用范围，并制定相应的技术路线。

（3）实验研究

2017年11月~2018年12月，课题组联合秦山环境应急监测中心、仪器厂家等单位开展实验研究工作，研究的内容包括滤膜性能、采样质量控制、样品制备、样品放射性冷却、样品高度和密度差异校正等，进一步优化方法的各项技术参数和条件，确定具体的技术内容和探测下限、滤膜截留效率和压降等方法特性指标，完善方法质控要求。

(4) 开题论证

2019年3月27日，标准制定组织单位召开了标准开题论证会，论证专家通过了该标准的开题论证。

(5) 组织方法验证

2019年4月~2019年8月，确定方法验证技术路线，定制标准物质，制备方法验证样品，开展精密度和准确度验证实验。

2 标准制定的必要性分析

气溶胶中 γ 放射性核素的测量是国家辐射环境监测网（以下简称国控网）常规监测项目，亦是核事故情况下的预警监测项目，测量结果可用于评估空气中的放射性核素对人体直接造成的外照射、以及因吸入空气中的放射性核素而造成的内照射。掌握环境空气气溶胶中 γ 放射性核素活度浓度的水平，对于评价核与辐射设施向环境排放放射性物质是否遵守剂量限值和剂量约束值，特别是应急情况下，对于判明污染物类型，评价污染范围和可能造成污染程度、决策采取的防护行动均具有重要意义。

2.1 放射性气溶胶的环境危害

气溶胶是固体或液体微粒物质在空气中形成的气体分散体系，含放射性核素的气溶胶称为放射性气溶胶。

放射性物质可通过以下几种方式进入大气，从而使环境中气溶胶含有放射性核素：1) 核与辐射设施在正常运行时，向大气环境排放气态流出物；2) 大气层核试验、

切尔诺贝利和福岛等核事故向大气环境释放大量放射性物质；3) 地层和建筑物等飘逸到空气中的氡，经衰变生成钋、铋、铅等天然放射性子体；4) 燃煤电厂等人为活动向大气环境排放天然放射性物质。

气溶胶在大气中随气流而迁移，或在高空成为雨、雪的凝聚核心，或通过溶解和化学反应与水滴结合，降落到地面。沉降于地面的放射性物质又可通过水的蒸发、风的作用而重新进入大气。

气溶胶中的放射性核素对人直接造成外照射，也可因吸入而造成内照射。

2.2 相关环保标准和环保工作的需要

辐射防护原则包括正当性、最优化和剂量限值与约束。正当性是前提，最优化是辐射防护的目标，剂量限值与约束是上限。

(1) 剂量限值

剂量限值是受控实践使个人所受到的有效剂量或当量剂量不得超过的值。表 2-1 列出了《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》（GB18871-2002）中规定的公众照射和职业照射个人剂量限值。

表 2-1 剂量限值^a

人员类别 剂量		实践使公众中有关关键人群组的成员所受到的平均剂量	职业照射	
			成人 ^b	16~18 岁的学徒或学生 ^d
有效剂量		1mSv/a；特殊情况下，连续 5 年的年平均平均值不超过 1mSv 时，某一单一年份可提高至 5mSv	20mSv/a（由审管部门决定的连续 5 年的年平均平均值 ^c ）；50mSv/a（任何一年）	6mSv/a
当量 剂量	眼晶状体	15mSv/a	150mSv/a	50mSv/a
	四肢（手和足）或皮肤	50mSv/a	500mSv/a	150 mSv/a

注：a. 表中所规定的剂量限值适用于在规期间外照射引起的剂量和在同一期间摄入放射性核素所致的待积剂量之和。

b. 用人单位有责任改善女性工作人员的工作条件，以保证为胚胎和胎儿提供与公众成员相同的防护水平。

c. 特殊情况下，依照审管部门的规定，剂量平均值可破例延长到 10 个连续年，此外，当任何一个工作人员自此延长平均期开始以来所接受的剂量累计达到 100mSv 时，应对这种情况进行调查。剂量限值的临时变更应遵循审管部门的规定，但任何一年内不得超过 50mSv，临时变更的期限不得超过 5 年。

d. 年龄小于 16 周岁的人员不得接受职业照射。

(2) 剂量约束值

剂量约束是对源可能造成的个人剂量预先确定的一种限制，它是与源相关的，被用作对所考虑的源进行防护和安全最优化时的约束条件。表 2-2 列出了我国部分核设施公众剂量约束值上限值。

表 2-2 我国部分核设施公众剂量约束上限值^a

辐射源（核设施）	公众剂量约束上限值	来源
铀矿冶设施	0.50mSv/a	《铀矿冶辐射防护和环境保护规定》 (GB 23727-2009)
铀加工与燃料建造设施	0.20mSv/a	《铀加工与燃料建造设施辐射防护规定》 (EJ 1056-2005)
核动力厂	0.25mSv/a	《核动力厂环境辐射防护规定》 (GB 6249-2011)
综合性核设施厂址或具体核设施	参考有关国标，由国家环境保护主管部门在每个具体设施环境影响报告书批复中明确	

注：a. 该剂量约束值对整个厂址而言，如果一个厂址有多个核设施，为了便于对每个核设施或每类核设施进行辐射防护最优化，通常在剂量约束值上限值范围内对一个厂址内的每个核设施或每类核设施进行剂量约束值分配。

(3) 放射性流出物排放控制

根据《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》（GB18871-2002）的规定，核与辐射设施向环境排放放射性物质，排放所致的公众照射符合 GB18871 所规定的剂量限值要求；此外，还应满足剂量约束值的要求。对放射性核素的排放应进行足够详细和准确的监测，以证明遵循了排放管理限值，并可依据监测结果估计关键人群组的受照剂量，即进行环境质量现状评价。

为评价核与辐射设施向环境排放放射性物质是否遵守剂量限值和剂量约束值，其中重要的手段之一就是采用空气气溶胶中放射性核素测定的方法，依据空气气溶胶中放射性核素活度浓度测量结果进行剂量估算。因此，开展空气气溶胶中 γ 放射性核素测量，掌握环境空气气溶胶中 γ 放射性核素活度浓度的水平，对于评价辐射照射剂量具有十分重要意义。

此外，应急状态下，为了尽可能及时地提供关于事故对环境及公众可能带来的辐射影响方面的数据，以便为剂量评价及防护行动决策提供技术依据，在事故早期，主要是尽可能多地获得关于放射性特性（烟羽的方向、高度、核素组成及其空间分布等）、以及地面上的辐射水平（地表、空气中浓度）方面资料。而在事故中、后期，则主要是获得关于地面上的辐射水平以及与食物链（特别是水和食品）污染状况有关的资料。在后期还要涉及更加广泛的区域。由此可见，空气气溶胶中 γ 放射性核素测量是事故期间最重要的测量项目之一，更是事故早期的预警测量项目，其测量结果对于判明污染物类型，评价污染范围和可能造成污染程度具有重要作用。

2.3 现行监测分析方法标准的实施情况和存在的问题

目前国控网环境空气气溶胶 γ 能谱分析主要依据《空气中放射性核素的 γ 能谱分析方法》（WS/T 184-2017，自2018年5月起实施，代替WS/T 184-1999），该方法仅对环境空气气溶胶 γ 能谱分析方法进行了通用性的规定，各监测单位气溶胶样品采集滤膜的选择和准备、采样质量控制、样品制备、 γ 能谱仪效率刻度源等各不相同，造成监测数据的可比性、准确性参差不齐。

本标准的制定，主要参考国际禁核组织（CTBTO）等的测量方法，结合我国辐射环境监测系统配备的大流量和超大流量气溶胶采样仪、高纯锗 γ 能谱仪等设备，对监测的试剂与材料；仪器与设备；样品的采集、保存、制备； γ 能谱仪的能量与效率刻度，样品的测量，结果的计算与表示等进行了统一的规范，与国外监测方法接轨，并具备可操作性，方法的探测下限能满足国控网辐射环境监测的工作需求。此外，本标准的制订对监测过程的质量控制开展了研究，统一了监测方法的质控措施，以降低人为因素对监测数据质量的影响。

3 国内外相关分析方法研究

3.1 主要国家、地区及国际组织相关分析方法研究

环境空气气溶胶 γ 能谱测量是美国、德国、法国、日本等国家环境放射性常规监测项目，也是全面禁止核试验条约组织筹委会（CTBTO）国际监测系统（IMS）的

重要禁核试核查技术，在国外已开展研究，测量的主要方法是使用大流量或超大流量采样器采集空气中气溶胶样品，用高纯锗 γ 能谱仪分析气溶胶样品中 γ 放射性核素组成及其浓度。国外关于环境空气气溶胶 γ 能谱测量的标准主要有：

(1) Certification of IMS particulate radionuclide stations(with guidelines for station installation) (CTB/PTS/INF.58/REV.8)

译文：国际监测系统（IMS）微粒放射性核素台站认证（及台站安装指南），以下简称IMS认证指南。

文件规定了IMS微粒放射性核素台站认证要求和流程，包括操作、技术、设备性能和标准可追溯性等方面的要求。

(2) Station specific operational manual (IMS-CNP REV.0)

译文：台站具体作业手册，以下简称IMS作业手册。

文件规定了IMS微粒放射性核素台站操作、维护、记录等方面的程序。

(3) Procedure for determining airborne particulate radionuclides in air near the ground by gamma spectrometry (Procedures manual for monitoring of radioactive substances in the environment and of external radiation , A- γ -SPEKT-AEROS-01) , Version October 2000

译文：近地表空气微粒中放射性核素 γ 能谱法测量标准规程（环境中放射性物质及外照射监测规程，A- γ -SPEKT-AEROS-01，2000年10月），以下简称德国标准A- γ -SPEKT-AEROS-01。

文件规定了未经化学预处理的空气微粒样品中特定的 γ 放射性核素测量方法。

(4) 環境試料採取法 (放射能測定法シリーズ 16)

译文：环境样品采集法（放射性测量方法系列丛书16），以下简称日本标准丛书16。

文件规定了各种环境样品（含大气浮尘）的采集方法，包括样品的现场采集、运输、并将其处理至可保存状态。

(5) ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法 (放射能測定法シリーズ 13)

译文：高纯锗 γ 能谱仪等仪器分析的样品前处理方法（放射性测量方法系列丛书 13），以下简称日本标准丛书13。

文件规定了使用高纯锗 γ 能谱仪分析环境样品（含大气浮尘）中的 γ 放射性核素时，测量样品的处理，包括从样品采集至装入测量容器的一系列处理方法。

(6) 緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法(放射能測定法シリーズ 24)

译文：应急时 γ 能谱分析样品的前处理方法（放射性测量方法系列丛书 24），以下简称日本标准丛书24。

文件规定了将应急时采集的环境样品（含大气浮尘）处理成相应测量样品的前处理方法，对于大气样品，还涉及到部分采样方法。

(7) ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー(放射能測定法シリーズ 7)

译文：高纯锗 γ 能谱分析方法（放射性测量方法系列丛书 7），以下简称日本标准丛书7。

文件规定了高纯锗 γ 能谱分析方法，包括设备的性能要求和操作、标准源效率刻度、样品制备测量和记录、能谱解析、活度浓度的计算等。

(8) HASL-300 EML Procedures Manual

译文：环境测量实验室（EML），程序手册 HASL-300，以下简称美国 HASL-300。

文件规定了EML实验室质量保证、采样、辐射测量、化学分析的程序，最新版为1997年出版的第28版，此后，程序手册已不再更新。

**(9) Expansion and Upgrade of the RadNet Air Monitoring Network
Volume 1 of 2: Conceptual Plan and Implementation Process, Office of
Radiation and Indoor Air, EPA , March 30, 2012**

译文：RadNet 空气监测网的扩展和升级，第1册：概念计划和实施过程，美国环保署（EPA）辐射和室内空气办公室，2012年3月30日，以下简称EPA监测网

文件主要介绍了美国环保署（EPA）辐射监测网（RadNet）针对空气监测实施过程中的扩展和升级，包括固定和便携式空气采样器站点选址标准、采样测量仪器、空气的采样和测量过程及数据的传输和评价。

**(10) Nuclear Energy – Measurement of radioactivity in the environment
– Air – Sampling of aerosols for measurement of radioactivity in the
environment , 2017**

译文：核能源-环境-大气放射性活度测量-在环境中提取气溶胶空气样本进行放射性活度测量，2017年。以下简称法国标准 NF M 60-760

文件主要介绍了环境中气溶胶采样的方法，不涉及气溶胶样品中放射性活度的测量。

上述国家和国际组织颁布的环境空气气溶胶中放射性核素 γ 能谱分析方法，均描述了设备和滤膜的性能要求、样品的采集与处理、 γ 能谱仪刻度与测量等详细过程，可作为本标准制订的参考。国外分析方法主要内容见表3-1。

表3-1 国外主要分析方法内容

标准特性	IMS认证指南 (最低要求)	日本标准丛书		德国标准 A-γ-SPEKT-AEROS-01	美国 HASL-300	美国 EPA监测网
		低流量	大流量			
采样流量	≥500 m ³ /h	3~6 m ³ /h	12~60 m ³ /h	65~750 m ³ /h	34~100 m ³ /h	60 m ³ /h
收集时间	24h, 允许10%的不确定性	数天~1周	数h~24h	1周	/	连续采样, 每周换样2次
氦子体衰变时间	≤24h, 若其他台站检测到可疑事件, 可减至最低6h	朝鲜核试验期间6h		根据探测下限的要求确定氦子体衰变时间	/ ¹⁾	1) 每次更换滤膜5h后, 测量总α和总β活度浓度, 若总α > 0.7pCi/m ³ 或总β > 1pCi/m ³ , 30min后再次测量。若仍超上述限值, 将滤膜送实验室测量总β活度, 若仍超1pCi/m ³ , 则进一步分析测量。 2) 用NaI谱仪每小时测量9个能量范围的γ计数。
测量时间	≥ 20h	全吸收峰净面积计数误差 < 2%, 约20h		≥ 20h	/	
滤膜性能	1) 充分地压缩、溶解并分析组成。 2) 滤膜: Φ=0.2 μm时, ≥80%。 3) 全球: Φ= 10 μm时, ≥60%, 包括80%的滤膜效率以及进入空气回路的收集效率。	圆形 直径50mm	长方形 254mm×203mm	1) DIN EN 1 8 2 2 - 1 (1 0) 的S标准 (即, 最易穿透粒径的MPPS ≥ 99.95%) 2) 考虑纤维素滤膜γ能谱测量之后的放化分析样品处理, 采用改进型的纤维素滤膜	圆形直径20.32cm 长方形254mm×203mm	圆形直径10cm
		Φ=0.3 μm时, ≥95% 包括玻璃纤维滤膜、纤维素滤膜			在采样流速范围内收集效率高、阻力小、机械强度高、本底低、可压缩、低灰量的滤膜, 主要采用聚丙烯纤维滤膜, 对0.2 μm的气溶胶(NaCl) 固体粒子, 截留效率不低于87%。	聚酯纤维滤膜
样品处理	压缩成低高度、直径为50mm的圆柱体	直接填装	折叠法 打孔法	压缩成表面为20mm×20mm, 厚度约7mm的实心平行六面体	压缩成1.3cm ³ 的小球	直接测量

续表3-1

标准 特性	IMS认证指南 (最低要求)	日本标准 丛书	德国标准 A- γ -SPEKT-AEROS-01	美国 HASL-300	美国 EPA监测网
谱仪 相对效率	$\geq 40\%$	10~40% (源至探头表面距离为25cm)	$\geq 40\%$	/	/
谱仪 能量分辨率	1)对1332 keV的 γ 射线,FWHM < 2.5keV, FWTM :FWHM \leq 2.0。 2)对122keV的 γ 射线, FWHM \leq 1.2keV。	1) 对1332keV的 γ 射线, FWHM 1.6~2.2keV, FWTM 3.5~4.2keV; 2)对122 keV的 γ 射线,FWHM 0.8~1.2keV; 3) 峰康比, 30~60 : 1	对1332 keV的 γ 射线, FWHM < 2.0 keV	对1332 keV的 γ 射线, FWHM < 2.2 keV	/
校准 能量范围	88~1836keV, 为了测量更多 放射性核素, 尤其是天然放 射性核素, 可降至46keV	46.5~1836keV	/	46.5~1836keV	/
探测下限 (μ Bq/m ³)	¹⁴⁰ Ba: 10~30 不考虑 ²¹² Pb的影响, 上限仅针 对本底地区	⁵⁴ Mn、 ⁶⁰ Co、 ¹³⁷ Cs: 74; ⁵⁹ Fe、 ⁶⁵ Zn: 111; ¹⁴⁴ Ce: 259 (样品 量为10 ⁴ m ³)	¹³⁷ Cs: 5.6; ¹³⁴ Cs: 2.7; ¹³¹ I: 2.0; ⁹⁵ Zr: 4.6; ⁹⁵ Nb、 ¹⁰³ Ru: 3.1; ¹⁴¹ Ce: 4.9; ¹⁴⁴ Ce: 21	/	/

注: 1) “/”表示未作相应规定。

3.2 国内相关分析方法研究

目前，我国环境空气气溶胶 γ 能谱分析主要依据《空气中放射性核素的 γ 能谱分析方法》（WST/T 184-2017（WS/T 184-2017，自2018年5月起实施，代替WS/T 184-1999），方法适用于环境空气、工作场所空气和个人空气中放射性核素的 γ 能谱分析。但该方法为通用分析方法，对采样设备性能、滤膜截留效率与压降、样品采集过程、样品保存与处理、探测下限、质量保证与质量控制等未作详细规定，作为环境监测依据的标准方法适用性和可操作性不强。

我国与高纯锗 γ 能谱测定相关的标准有《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》（GB/T 11713-2015）、《土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法》（GB/T 11743-2013）、《水中放射性核素的 γ 能谱分析方法》（GB/T 16140-2018）、《生物样品中放射性核素的 γ 能谱分析方法》（GB/T 16145-1995）、 γ 谱仪检定规程（JJG 417-2006），上述标准中关于高纯锗 γ 能谱仪的性能、刻度源和系统刻度、样品测量条件、不确定度评估和质量保证等规定，可作为本标准制定的参考。

我国与空气气溶胶采样相关的标准有《辐射环境空气自动监测站运行技术规范》（HJ 1009-2019）、《总悬浮颗粒物采样器技术要求及检测方法》（HJ/T 374-2007）、《环境空气总悬浮颗粒物的测定重量法》（GB/T 15432-1995）、《环境空气质量手工监测技术规范》（HJ 194-2017）、《总悬浮颗粒物检定规程》（JJG 943-2011）上述标准中大流量和超大流量气溶胶采样器的性能指标、关于总悬浮颗粒物采样器技术要求和检测方法、总悬浮颗粒物采样及其质量控制等规定，可作为本标准制定的参考。

4 标准制定的基本原则和技术路线

4.1 标准制定的基本原则

本着科学性、先进性和可操作性的原则，按照《国家环境保护制修订工作管理办法》、《环境监测 分析方法标准制订技术导则》（HJ 168-2010）的要求，参考IMS、美国、日本、法国、德国等相关标准，在我国现有标准基础上，结合目前我国辐射环境监测系统相关仪器设备的配置情况和实际要求制定本标准。

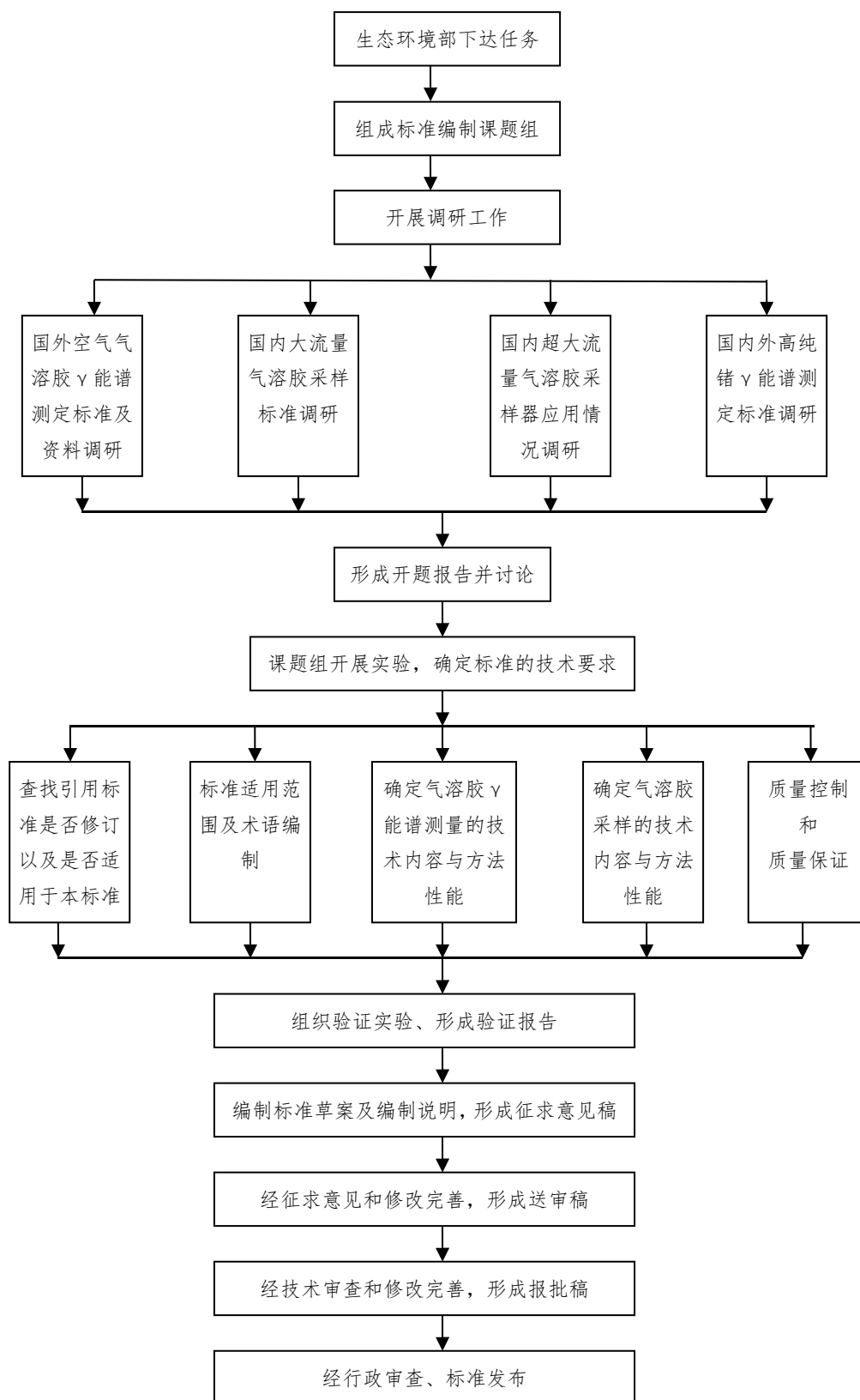
本标准制定的基本原则：

- （1）方法的测定内容、测定范围和探测下限满足相关环保标准和环保工作的要求。
- （2）方法准确可靠，满足各项方法特性指标的要求。
- （3）方法具有普遍适用性，易于推广使用。

4.2 标准制订的技术路线

通过对国内高纯 γ 能谱测定标准和空气中总悬浮颗粒物采样方法标准、国外空气中气溶胶 γ 能谱测定方法标准、国内超大流量气溶胶采样器的技术特点和实际使用情况、我国辐射环境监测系统意见与需求的充分调研和分析，结合验证实验，制定标准文本和编制说明。

本标准制订的技术路线如下：



5 方法研究报告

5.1 适用范围

(1) 样品采集与处理

目前国外和我国辐射环境监测系统环境空气气溶胶 γ 能谱分析,样品的采集主要采用大流量和超大流量两种采样器,样品的处理主要采用滤膜压缩处理,因此,本标准气溶胶采样的适用范围规定为:采用大流量或超大流量气溶胶采样器进行环境空气中气溶胶的采集,滤膜经压缩处理后用高纯锗 γ 能谱仪分析。

(2) 高纯锗 γ 能谱分析测量

本标准高纯锗 γ 能谱分析测量的适用范围引自《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》(GB/T 11713-2015),即分析 γ 射线能量特征谱线能够分辨开的 γ 放射性核素。

(3) 方法探测下限

《IMS 认证指南》规定的探测下限最低要求:对于 ^{140}Ba ,为 $10\sim 30\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (不考虑 ^{212}Pb 的影响,上限仅针对高本底地区)。《德国标准 ISSN 1865-8725》规定的探测下限大多为数 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ 。考虑到我国辐射环境监测系统标准物质的配置、高纯锗 γ 能谱仪性能及环境数据统计的需要,参考《IMS 认证指南》和《德国标准 ISSN 1865-8725》的规定,本标准将采样体积约为 $10000\ \text{m}^3$ 时的探测下限规定为: ^7Be 、 ^{140}Ba 、 ^{144}Ce , $50\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$; ^{40}K 、 ^{210}Pb 、 ^{234}Th , $100\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$; ^{54}Mn 、 ^{58}Co 、 ^{60}Co 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs , $5\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$; ^{95}Zr , $10\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$; ^{131}I 、 ^{228}Ac : $20\ \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ 。

为验证本标准探测下限的合理性,课题组组织4家实验室,按照本标准样品采集、制备、分析、计算的全部步骤测定并计算环境样品的探测下限,实验结果表明,个别样品由于采样结束至测量开始时间间隔远大于本标准草案的规定,受衰变校正的影响,样品中 ^{131}I 的探测下限偏高。此外,课题组统计了2016~2018年国控网气溶胶样品 γ 能谱分析结果,统计结果见表5-1。由表可见,各核素探测下限的主要分布区间小于标准规定的最高探测下限。

表 5-1 国控网气溶胶 γ 能谱分析探测下限统计结果

核素	小于探测下限样品数	探测下限主要分布区间 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$) ¹⁾
K-40	3112	32~92
Mn-54	1140	1.5~5.8
Co-58	1126	1.5~6.1
Co-60	1114	1.6~7.0
Zr-95	1124	2.7~8.5
I-131	4993	1.7~6.4
Cs-134	5066	1.6~5.2
Cs-137	5069	1.6~5.2
Ce-144	1132	6.0~32
Ac-228	3495	6.9~21
Th-234	3605	22~176 ²⁾

注：1) 主要分布区间的下界为所有值从小到大排列后的第 10 百分位数，上界为第 90 百分位数。

2) 个别实验室未配置宽能 γ 能谱仪导致 ²³⁴Th 探测下限偏高。

5.2 规范性引用文件

本标准共引用三项标准，分别为《辐射环境空气自动监测站运行技术规范》(HJ 1009-2019)、《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》(GB/T 11713-2015)、《土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法》(GB/T 11743-2013)。其中，大流量和超大流量采样器的性能和指标引用了《辐射环境空气自动监测站运行技术规范》(HJ 1009-2019)；高纯锗 γ 能谱仪及其刻度源的性能和指标、能量刻度曲线的线性引用了《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》(GB/T 11713-2015)；样品 γ 能谱分析的干扰和影响引用了《土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法》(GB/T 11743-2013)。

5.3 术语和定义

本标准共规定了 3 条术语，其中“气溶胶”定义引自《空气中放射性核素的 γ 能谱分析方法》(WS/T 184-2017) 条款 3.1，“工作点流量”和“标准状态”定义分别引自《环境空气颗粒物(PM₁₀和 PM_{2.5}) 采样器技术要求及检测方法》(HJ 93-2013) 的条款 3.5 和条款 3.6。

5.4 方法原理

本标准方法原理，采样部分参考了《环境空气 总悬浮颗粒物的测定 重量法》（GB/T 15432-1995），同时强调了压缩处理的滤膜样品制备方式。

气溶胶 γ 能谱分析，目前滤膜样品主要有三种制备方法，包括 IMS、美国 and 德国所采用的压缩法，以及日本所采用的折叠法和打孔法。课题组根据超大流量采样器滤膜的有效尺寸，按照压缩法建立 $\Phi 50*5\text{mm}$ 测量样品模型，按照折叠法建立 $\Phi 75*50\text{mm}$ 的测量样品模型，重量均为 20.9g，采用蒙特卡罗模拟计算方法进行两个测量样品 γ 能谱分析探测效率的比较，比较结果见表 5-2。比较结果表明，在同等条件下，体积小密度高的 $\Phi 50*5\text{mm}$ 测量样品的探测效率约为 $\Phi 75*50\text{mm}$ 测量样品的 2.2 倍。课题组还开展了样品制备密度均匀性实验，实验用超大流量采样器采集了约 15000m^3 的气溶胶样品，经压缩装样品盒后，正面和倒置分别用高纯锗 γ 能谱仪测量，实验结果表明，样品倒置前后气溶胶样品中 ^7Be 活度浓度测定结果偏差约 3%。而采用打孔法制备测量样品，则存在操作流程较为复杂，打孔时易造成样本洒落和交叉污染，须对滤膜打孔面积占总面积比例进行校正等缺陷。

因此，为了提高探测效率和测量准确性，通过一种有效的几何方式制备密度均匀的测量样品，减小测量样品体积，缩短测量样品与 γ 能谱仪探测器之间的距离，同时简化测量样品的制备流程，本标准采用滤膜压缩的制备方式。

表 5-2 压缩法和折叠法测量样品探测效率比较

能量	100 keV	150 keV	200 keV	300 keV	500 keV	700 keV	1000 keV	1400 keV	2000 keV
$\Phi 50*5$ 效率 a	1.94E-01	1.65E-01	1.32E-01	8.84E-02	5.22E-02	3.78E-02	2.73E-02	2.03E-02	1.47E-02
$\Phi 75*50$ 效率 b	8.83E-02	7.51E-02	6.01E-02	3.99E-02	2.34E-02	1.68E-02	1.20E-02	8.91E-03	6.45E-03
a/b	2.19	2.20	2.20	2.22	2.24	2.25	2.27	2.28	2.28

5.5 试剂和材料

(1) 滤膜

针对国控网环境气溶胶 γ 能谱分析过程中存在的样品采集滤膜易堵塞、滤膜样

品压缩后易变形等现象，课题组调研了国内外主要分析方法滤膜的性能和技术指标，国外调研结果见表 5-1。我国环境空气总悬浮颗粒物、颗粒物（PM₁₀ 和 PM_{2.5}）相关测定标准，对滤膜性能的要求为在膜面流速下对 0.3 μm 标准粒子的截留效率不低于 99%，空滤膜在 0.45m/s 的洁净空气流速时，压降小于 3kPa。

根据本标准的方法原理，滤膜应压缩性能良好。若需要进一步放射性化学分析，则滤膜应还具有完全溶解性。同时，为了防止空气中高浓度颗粒物可能导致采样期间滤膜过载堵塞，滤膜应具有较低的压降。课题组参考《高流速下气溶胶取样滤材的性能测试》和《高效空气过滤器及滤材 第 3 部分：滤纸试验》(T/CRAA 431.3-2017)，收集部分滤膜，与 IMS 广东核素监测台站采用的滤膜进行了性能对比测试，测试结果见表 5-3。此外，课题组组织国内主要超大流量采样器生产企业开展气溶胶样品采集滤膜流量变化实验，实验采用符合本标准程序规定的滤膜，实验结果见表 5-4。由表可见，连续采集 3~7 天气溶胶样品，采样期间流量基本保持稳定，满足每小时平均流量变化±10%设定流量，采样全过程平均流量变化±5%设定流量的流量控制指标。

根据我国环境空气质量现状和气溶胶 γ 能谱分析采样特点，总结国控网监测经验，综合滤膜的压缩性、溶解性、截留效率、压降等性能，本标准滤膜的性能规定为：在膜面流速为 0.6 m/s 时，对 0.3 μm 标准粒子的截留效率应不低于 95%。空滤膜在 0.6m/s 的洁净空气流速时，压降应小于 1kPa。天然放射性核素含量低，无人工放射性污染。

表 5-3 部分滤膜性能测试结果

流速	粒径范围	截留效率 /%			品质因子 Q_f ¹⁾			压降/kPa		
		滤材 1	滤材 2	IMS 滤材	滤材 1	滤材 2	IMS 滤材	滤材 1	滤材 2	IMS 滤材
0.45m/s	0.115 μm	82.6	97.0	96.4	1.22	6.47	6.25	1.44	0.54	0.53
	0.154 μm	85.3	97.7	97.3	1.33	6.96	6.81			
	0.205 μm	87.9	98.5	97.8	1.46	7.74	7.17			
	0.274 μm	92.0	98.1	98.7	1.75	7.34	8.14			
	0.365 μm	93.7	97.9	98.3	1.92	7.15	7.65			
	0.487 μm	91.6	95.2	98.7	1.72	5.64	8.20			
0.5m/s	0.115 μm	81.5	95.5	96.8	1.08	5.09	5.84	1.59	0.61	0.59
	0.154 μm	86.9	96.8	97.6	1.30	5.67	6.31			
	0.205 μm	90.8	97.5	98.3	1.52	6.08	6.87			
	0.274 μm	95.4	97.8	98.7	1.96	6.28	7.38			
	0.365 μm	95.5	96.5	98.8	1.97	5.52	7.50			
	0.487 μm	88.2	93.0	99.0	1.36	4.35	7.82			
0.6m/s	0.115 μm	77.7	94.9	94.3	0.79	4.08	4.03	1.90	0.73	0.71
	0.154 μm	81.7	96.3	95.7	0.89	4.52	4.42			
	0.205 μm	86.4	96.9	97.3	1.05	4.78	5.09			
	0.274 μm	90.0	97.7	97.8	1.21	5.14	5.39			
	0.365 μm	91.9	96.5	98.5	1.32	4.58	5.91			
	0.487 μm	87.9	93.6	98.3	1.11	3.78	5.71			
1.0m/s	0.115 μm	67.4	89.3	91.7	0.36	1.88	2.11	3.08	1.19	1.18
	0.154 μm	76.2	91.9	94.2	0.46	2.11	2.41			
	0.205 μm	84.6	93.4	96.2	0.61	2.29	2.78			
	0.274 μm	90.0	93.3	97.6	0.75	2.28	3.15			
	0.365 μm	87.2	92.0	97.1	0.67	2.12	3.00			
	0.487 μm	79.1	/	96.5	0.51	/	2.85			

注：1) 参考英国标准 EN779，根据截留效率和压降，通过品质因子 Q_f ，综合评价滤膜性能。 Q_f 定义为：
$$Q_f = \frac{\ln\left(\frac{1}{1-E}\right)}{\Delta p}$$

表 5-4 气溶胶样品采集滤膜堵塞实验结果

采样器	采样时间		设定 流量 (m ³ /h)	流量 (m ³ /h)			与设定流量比值		
	起始	结束		最大小时 平均流量	最小时 平均流量	全过程 平均流量	最大小时 平均流量	最小时 平均流量	全过程 平均流量
NC-MDS -1200	18/6/20 17:12	18/6/27 17:12	600	604.6	596.3	600.4	1.01	0.99	1.00
	18/7/2 10:08	18/7/9 10:08	600	605.1	595.5	600.6	1.01	0.99	1.00
	18/7/12 13:55	18/7/19 13:50	600	606.1	595.7	600.9	1.01	0.99	1.00
HRHA01 -SFS1000/A	18/4/20 09:10	18/4/23 08:50	638.8	644.5	610.7	624.7	1.01	0.96	0.98
	18/4/24 8:45	18/4/27 7:35	614.2	643.0	609.6	626.3	1.05	0.99	1.02
	18/5/22 8:45	18/5/26 9:20	615.2	641.3	610.0	625.0	1.04	0.99	1.02

(2) 刻度源

刻度源的性能与指标参考《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》(GB/T 11713-2015), 其中, 能量刻度源的性能和指标引自条款 4.1 和 4.2.1, 效率刻度源的性能和指标引自条款 4.1 和 4.3.2。根据条款 4.3.2 的要求, 效率刻度源原则上要选择与待测样品的几何形状和大小完全相同、基质一样或类似、质量密度相等、核素含量和 γ 射线能量已知, 以及源容器材料和样品容器材料相同的刻度源。因此, 根据制备的滤膜样品几何形状, 同时为了简化效率刻度并提高刻度的准确性, 避免刻度时级联加和干扰, 本标准规定: 以空白滤膜或类似的模拟基质为基质、直径与样品相同、高度与样品相近的圆柱形辐射源, 其性能和技术指标应符合 GB/T 11713 条款 4.1 和条款 4.3.2 的规定, 推荐优先使用发射单能 γ 射线的核素。

(3) 检验源

根据《 γ 谱仪检定规程》(JJG 417-2006) 条款 6.8 的规定: 为了监督谱仪的长期稳定性, 半导体 γ 谱仪应配备有长寿命的、高中低能区至少各有一条 γ 射线的监督源, 因此本标准检验源规定: 长寿命的、高中低能区至少各有一条特征 γ 射线

的辐射源，活度与效率刻度源相当，其性能和技术指标应符合 GB/T 11713 条款 4.1 的规定。

5.6 仪器和设备

(1) 气溶胶采样器

《IMS 认证指南》规定，超大流量采样器采样流量 $\geq 500 \text{ m}^3/\text{h}$ ，流量计误差 $\leq 5\%$ 。《总悬浮颗粒物采样器技术要求及检测方法》（HJ/T 374 -2007）规定，大流量采样器工作点流量为 $1.05 \text{ m}^3/\text{min}$ ，滤膜有效尺寸 $230 \times 180 \text{ mm}$ ，采样口抽气速度的相对变化不得超过 $\pm 5\%$ 。本标准超大流量采样器和大流量采样器的性能和指标引自《辐射环境空气自动监测站运行技术规范》（HJ1009-2019）条款 5.3，HJ1009-2019 规定，超大流量采样器流量不小于 $600 \text{ m}^3/\text{h}$ ，流量示值误差 $\leq 5\%$ ，大流量采样器流量不小于 $60 \text{ m}^3/\text{h}$ ，流量示值误差 $\leq \pm 2\%$ 。此外，为了尽量统一制备后滤膜样品的高度，以减少与效率刻度源几何形状的差异，在调研了我国辐射环境监测系统主要超大流量采样器技术参数的基础上，本标准规定：大流量采样器滤膜有效尺寸为 $230 \times 180 \text{ mm}$ （即膜面流速 0.42 m/s ），超大流量采样器滤膜有效尺寸为 $570 \times 470 \text{ mm}$ （即膜面流速 0.62 m/s ）。

(2) γ 能谱仪

《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》（GB/T 11713-2015）条款 3.1 规定， γ 能谱仪探测器的相对效率一般应大于 20%。根据我国辐射环境监测系统 γ 能谱仪调研结果，同时参考《IMS 认证指南》和《德国标准 A- γ -SPEKT-AEROS-01》的相关规定，为了满足方法探测下线的要求，本标准规定： γ 能谱仪探测器的相对效率一般应不小于 40%，探测器在屏蔽室内，在 $40 \sim 2000 \text{ keV}$ 能区内的本底计数不高于 2cps。此外，由于全国辐射环境监测方案中环境气溶胶 γ 能谱分析包括了 ^{210}Pb 等低能核素，参考《日本标准丛书 7》的相关规定，本标准规定： γ 射线能量低于 50 keV 的核素测量，推荐优先使用 N 型或 P 型宽能 γ 能谱仪。

由于 γ 能谱仪测量室环境温度的剧烈变化对探测器运行的稳定性有较大影响，

此外，为了避免电子器件和重要的探测器组件内部冷凝，还须对环境湿度进行控制。参考《IMS 认证指南》的相关规定，本标准规定： γ 能谱仪运行期间，应对测量室温度变化和湿度进行控制。

(3) 温度计、气压计、流量校准器

温度计、气压计、流量校准器的性能和技术指标参考了环境空气总悬浮颗粒物、颗粒物（PM10和PM2.5）测定标准的相关规定。

5.7 样品

5.7.1 采样前准备

国内外相关标准采样前准备的要求见表 5-5。本标准的采样前准备程序参考了《IMS 作业手册》、《环境空气质量手工监测技术规范》（HJ194-2017）、《环境空气总悬浮颗粒物的测定重量法》（GB/T 15432-1995）的相关规定。

表 5-5 国内外标准采样前准备要求

标准	采样前准备要求
IMS 作业手册	在工作台上放置一个干净的滤膜架，戴上新的一次性手套，从滤膜盒中取一张新滤膜放置在滤膜架上，滤膜的支持层朝下，确保滤膜平整、无褶皱，覆盖整个采样区。
HJ194-2017	采样滤膜使用前检查边缘是否平滑。薄厚是否均匀，且无毛刺、无碎屑、无针孔、无折痕、无损坏。确保滤膜夹无污染、无损坏。
GB/T 15432-1995	每张滤膜均需用 X 光看片进行检查，不得有针孔或任何缺陷。在选中的滤膜光滑表面的两个对角打印编码。准备好滤膜平展地放在滤膜保存盒中，采样前不得弯曲或折叠。

5.7.2 样品采集

本标准的样品采集程序根据超大流量采样器的特点，综合探测下限指标，并参考了《环境空气质量手工监测技术规范》（HJ194-2017）、《环境空气总悬浮颗粒物的测定重量法》（GB/T 15432-1995）、《法国标准 NF M 60-760》的相关规定。

5.7.3 样品制备

本标准的样品制备采用压缩法，制备方法同《IMS 作业手册》。由于方法探测下

限不仅取决于高纯锗 γ 能谱仪的性能,还与样品中 ^{212}Pb 与 ^{214}Pb 等氡子体浓度密切相关。而样品中氡子体浓度除受采样地点及其当地气象条件的影响外,样品的氡子体衰变时间亦是重要影响因素。为了降低方法的探测下限,同时兼顾 ^{131}I 等短半衰期核素衰变的影响,本课题组开展了样品氡子体衰变时间和测量时间对方法探测下限影响实验。实验用超大流量采样器采集了 15000m^3 的气溶胶样品,样品运输和制备的时间为3小时,经压缩制备后用高纯锗 γ 能谱仪测量,每小时收集 γ 能谱,计算不同样品氡子体衰变时间和测量时间部分核素的探测下限,计算结果见表5-6。

表 5-6 样品氡子体衰变时间和测量时间对探测下限影响实验结果

核素	衰变时间 测量时间	探测下限 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)						
		3h	6h	8h	24h	48h	72h	96h
^7Be	24h	63.2	57.1	53.7	33.7	19.2	13.5	13.2
	8h	136	122	115	69.3	37.0	25.2	24.2
	6h	161	145	137	81.6	44.1	30.2	27.6
^{131}I	24h	10.2	9.4	8.9	5.9	3.4	2.9	2.9
	8h	21.3	19.3	18.3	12.0	6.7	5.0	4.9
	6h	25.3	23.0	21.6	14.2	8.0	5.8	5.7
^{134}Cs	24h	6.9	6.2	5.8	3.6	2.1	1.5	1.4
	8h	14.8	13.3	12.4	7.5	4.0	2.8	2.2
	6h	17.7	15.7	14.8	8.8	4.8	3.2	2.9
^{137}Cs	24h	7.8	7.0	6.6	4.2	2.4	1.7	1.5
	8h	16.7	15.0	14.1	8.9	4.7	3.2	2.9
	6h	20.0	17.8	16.8	10.6	5.5	3.8	3.4
^{140}Ba	24h	30.8	28.3	26.7	16.8	9.8	7.4	6.9
	8h	66.4	60.6	57.4	35.1	19.4	13.6	12.2
	6h	79.1	71.8	68.2	41.6	23.0	16.1	14.0
^{210}Pb	24h	151	137	128	78.3	42.1	29.2	25.7
	8h	326	294	274	166	85.9	54.4	45.5
	6h	389	351	327	197	101	64.2	52.4

此外,按照标准程序的规定,样品中 ^{131}I 探测下限的计算见公式(1),其中样品中 ^{131}I 特征 γ 射线全吸收峰本底计数可由公式(2)计算,因 ^{214}Pb 的半衰期仅26.8min,本标准程序氡子体衰变时间不小于6小时,计算时不予考虑。根据样品测

定结果，样品氡子体衰变时间对 ^{131}I 探测下限的影响见图 5-1。参考美国 EPA 监测网和法国标准 NF M 60-760 的规定，综合实验和计算结果，本标准程序规定：采样后的滤膜放入干燥箱进行氡子体衰变，根据样品中氡子体活度的大小确定衰变时间，一般为 3~5 天。

$$MDC_{(I-131)} = \frac{4.66\sqrt{N_{b(I-131)}}}{T \times V_n \times \varepsilon \times F \times \gamma} \times K_{(I-131)} \quad (1)$$

$$N_{b(I-131)} = N_{b0} + N_{b(Pb-212)} = N_{b0} + P_1 \times A_{b(Pb-212)} \times V_n / (K_{(Pb-212)}) \quad (2)$$

式中： $N_{b(I-131)}$ —样品中 ^{131}I 特征 γ 射线全吸收峰本底计数；

N_{b0} —样品中除 ^{212}Pb 及其子体外特征 γ 射线全吸收峰本底计数；

$A_{b(Pb-212)}$ —样品采集过程中 ^{212}Pb 活度浓度；

P_1 —拟合参数；

其余参数释义见标准程序规定。

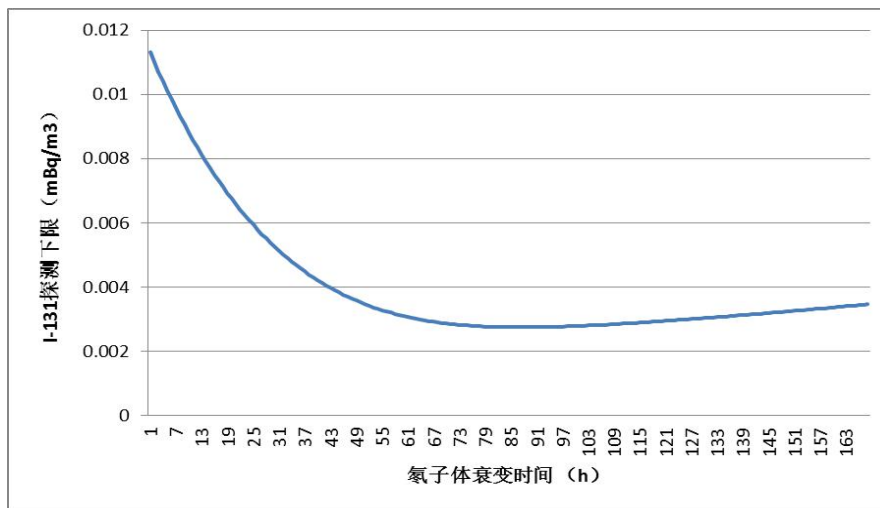


图 5-1 样品氡子体衰变时间对 ^{131}I 探测下限的影响

本标准的效率刻度源是以空白滤膜或类似的模拟基质为基质、直径与样品相同、高度与样品相近的圆柱形辐射源。受采样地点及其当地气象条件的影响，效率刻度源高度、密度与测量样品存在一定的差异，为了结果计算时采用蒙特卡罗模拟计算等方法进行密度和高度差异校正，同时结合滤膜采集的尘量进行测量结果分析，样

品制备增加了压制后滤膜称量和高度测量步骤。为了准确称量滤膜样品，课题组开展了采样滤膜质量平衡实验，实验用超大流量采样器采集了约 15000m³的气溶胶样品，采样后滤膜放入干燥箱中干燥，每隔一定时间称量，实验结果见表 5-7。实验结果表明，采集的滤膜样品在干燥箱中干燥 6 小时后，在称量的误差范围内即可达到质量平衡。因此，本标准样品制备规定，采样后的滤膜放入干燥箱氦子体衰变 3~5 天后称量，可满足质量平衡的要求。

表 5-7 采样滤膜质量平衡实验结果

干燥时间 (h)	干燥箱温度 (°C)	干燥箱湿度 (%)	滤膜重量 (g)
0	24	35	20.9260
6	24	35	20.7873
12	24	35	20.7777
19	24	35	20.7849
24	24	35	20.7622

由于大流量采样器滤膜面积不足超大流量采样器滤膜的 1/4，经实验表明，至少须 4 张滤膜一起压制，方可使制备后的滤膜测量样品几何形状规整且与效率刻度源相似。为此，课题组开展了多张滤膜折叠效果实验，将 4 张大流量采样器空白滤膜分别按如下方式制备样品：①4 张滤膜叠加后，按照标准规定的程序折叠后塞入压样模具底部压制。②每张滤膜按照标准规定的程序折叠后再依次塞入压样模具底部压制。实验结果表明，采用方法①制备的样品几何形状更规整。因此，本标准样品制备规定：大流量采样器采集的滤膜样品至少 4 张一起压制，以保证制备后的样品几何形状规整且与效率刻度源相似，必要时可与空白滤膜依次叠加整齐后折叠压制。

5.8 分析步骤

5.8.1 γ 能谱仪刻度

本标准的 γ 能谱仪能量刻度程序参考了《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》(GB/T 11713-2015) 条款 4.2.1，以及《IMS 认证指南》、《美国 HASL-300》的相关规定。

本标准的 γ 能谱仪效率刻度程序结合我国辐射环境监测系统配置的效率刻度源特点，并参考了《生物样品中放射性核素的 γ 能谱分析方法》(GB/T 16145-1995)

条款 6.1.4、《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》（GB/T 11713-2015）条款 4.3.4.2。

5.8.2 样品测定

按照《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》（GB/T 11713-2015）条款 5.2.3 的规定，根据样品中放射性强弱、对特征峰面积统计误差的要求确定谱获取时间，特征峰峰面积计数的统计误差应小于 10%或 24h 是合理的最长计数时间。根据环境气溶胶样品中放射性活度水平，总结国控网监测经验，参照《空气中放射性核素的 γ 能谱分析方法》（WS/T 184-2017）的相关规定，本标准样品测定时间规定为：测量时间一般不小于 24 小时或满足待测核素特征峰峰面积计数的统计误差小于 5%。

为了加强 γ 能谱分析的质量控制，参考了 GB/T 11713-2015 条款 4.2.5，以及《日本标准丛书 7》、《IMS 认证指南》、《美国 HASL-300》的相关规定，结合气溶胶 γ 能谱分析的特点，本标准刻度曲线核查规定为：检查 γ 能谱内 ${}^7\text{Be}$ 477.6 keV 全吸收峰的中心道址，如果与能量刻度时该能量的全吸收中心峰道址变化超过 0.5keV，应重做能量刻度

5.9 结果计算与表示

5.9.1 衰变校正

依据《IMS 认证指南》的相关规定，本标准样品中待测核素的活度浓度的计算采取三段衰变校正，分别为采样开始至结束的衰变校正 K_S 、采样结束至测量开始的衰变校正 K_W 、样品测量期间的衰变校正 K_C ，其中采样开始至结束的衰变校正依据《IMS 认证指南》的相关规定，校正至采样开始时间，同时假设样品采集过程中核素浓度恒定。

为了简化衰变校正，课题组开展了待测核素半衰期与衰变时间比值（即 $x = T_{1/2}/t$ ）对衰变校正因子 K_S 、 K_W 、 K_C 影响的计算，计算结果见表 5-8。计算结果表明，衰变校正因子 K_S 、 K_W 、 K_C 均为 x 的递减函数，当 $x \geq 100$ 时，忽略衰变校正对待测核素活度浓度的影响 $\leq 1.4\%$ 。因此，本标准测定结果衰变校正规定为：如果待测核素半衰期与样品采样时间相比大于 100， K_S 可取值 1；如果待测核素半

衰期与样品采样结束至测量开始时间相比大于 100, K_w 可取值 1; 如果待测核素半衰期与样品测量时间相比大于 100, K_c 可取值 1。

表 5-8 待测核素半衰期与衰变时间比值对衰变校正因子的影响

$x = T_{1/2}/t$	K_s	K_c	K_w	$K_s \times K_w \times K_c$
100	1.00347	1.00347	1.00696	1.01396
200	1.00173	1.00173	1.00347	1.00695
300	1.00116	1.00116	1.00231	1.00463

5.9.2 样品高度和密度差异校正

课题组按本标准草案中效率刻度源的规定, 以空白滤膜为基质, 其尺寸同超大流量采样器滤膜的有效尺寸, 经压缩后直径与样品相同的圆柱形体源, 高度约 4mm。由于我国地域辽阔, 各地的气象条件和环境空气质量迥异, 采集的气溶胶样品净尘量差别较大, 课题组统计了 2016~2018 年国控网 5000 余个气溶胶样品 γ 能谱分析结果, 采集的气溶胶样品净尘量主要分布区间为 (0.2~3.7) g, 均值为 1.6g, 中位数为 0.9g。实验结果表明, 上述净尘量的气溶胶样品经压缩处理, 测量样品的高度一般不超过 5mm。

为此, 课题组开展了气溶胶样品高度和密度差异对测量结果影响实验, 实验各制备一个净尘量为 5g、10g 左右的实际加标样品, 按标准草案中样品分析的步骤进行测定, 计算样品加标回收率, 实验结果见表 5-9。根据实验结果, 本标准程序规定: 一般采样条件下, 测量样品可以不进行样品高度和密度差异校正, 但如果测量样品的高度和密度与效率刻度源间差异较大, 应对样品中待测核素特征 γ 射线全吸收峰净面积计数率作高度和密度差异校正, 可根据测量样品几何尺寸和重量等参数采用蒙特卡罗模拟计算方法等方法校正。

表 5-9 样品高度和密度差异校正实验结果

样品序号	样品净尘量 (g)	样品高度 (mm)	加标回收率 (%)							
			^{241}Am	^{57}Co	^{139}Ce	^{113}Sn	^{137}Cs	^{54}Mn	^{88}Y	^{60}Co
1 ¹⁾	1.335	4.4~4.7	99.2	98.7	98.5	98.5	98.0	98.6	100.1	98.4
2 ²⁾	10.526	7.1	86.1	88.9	85.7	95.3	85.9	89.5	89.9	92.4
			95.6	98.6	95.1	104.8	93.6	97.5	97.1	99.8

注：1) 为 7 家实验室的测量结果均值。2) 加底纹的为采用蒙特卡罗模拟计算方法校正后结果。

5.9.3 结果计算

为了统一全国辐射环境监测数据的上报、处理、统计和分析，本标准对测定结果的扩展不确定度及其评定、小于探测下限的测定结果表示及其探测下限的计算方法进行了统一的规定。其中扩展不确定度为置信度为 95%时的不确定度（即扩展因子为 2），评定方法参考了《水中放射性核素的 γ 能谱分析方法》（GB/T 16140-2018）。探测下限均为置信度为 95%时，样品中核素活度浓度的探测下限，计算方法同《IMS 认证指南》。

5.10 质量保证与质量控制

5.10.1 采样过程质量保证与质量控制

参考了《空气总悬浮颗粒物的测定重量法》（GB/T15432-1995）以及环境空气颗粒物（PM₁₀ 和 PM_{2.5}）测定标准的相关规定，综合辐射环境监测采样器的使用频率，本标准采样器校准期限规定为：新购置或维修后的采样器在启用前应送有资质的计量机构进行校准、或自行校准和比对，日常使用的采样器每年至少进行一次流量校准或比对。校准方法参考了《总悬浮颗粒物采样器检定规程》（JJG 943-2011）和《环境空气颗粒物（PM_{2.5}）手工监测方法（重量法）技术规范》（HJ656-2013）的相关规定。

针对超大流量采样器流量校准困难的现状，参考了《IMS 认证指南》、《空气总悬浮颗粒物的测定重量法》（GB/T15432-1995）以及环境空气颗粒物（PM₁₀ 和 PM_{2.5}）测定标准的相关规定，本标准采用比对测试方法对超大流量采样器进行质量控制，为此，课题组开展了大流量采样器和超大流量采样器比对测试实验。在同一环境条件下，将待测超大流量采样器和参比大流量采样器的采样入口尽量调整至同一高度，采样器与之间的距离为（4~6）m。参比大流量采样器经流量校准后，与待测超大流量采样器相同时间段并行采样 3~4 天，为了缩短采样时间，使用多台参比大流量采样器与超大流量采样器并行采样，测定环境气溶胶样品中 ⁷Be 活度浓度，按标准程序

规定的公式计算相对偏差，实验结果见表 5-10。实验结果表明，比对测试结果基本满足《IMS 认证指南》规定的相对偏差不大于 20%的控制指标，个别自动站采样期间空气质量较好，采集的样品净尘量较低，因测量误差造成比对测试相对偏差略高于 20%，可通过延长采样时间或使用多台参比大流量采样器并行采样的方式进行比对测试。

表 5-10 比对测试实验结果

采样时间		采样器	标况体积 (m ³)	净尘量偏差 (%)	⁷ Be 活度浓度偏差 (%)
起始	结束				
2019/1/27	2019/1/31	1 台参比大流量采样器	5947	16.2	15.5
		待测超大流量采样器	65304		
2019/5/28	2019/6/1	1 台参比大流量采样器	6015	11.5	16.4
		待测超大流量采样器	67639		
2019/5/8	2019/5/9	2 台参比大流量采样器	7092	2.0	7.8
		待测超大流量采样器	14400		
2019/5/10	2019/5/11	2 台参比大流量采样器	7203	1.4	7.5
		待测超大流量采样器	14400		
2019/5/15	2019/5/16	2 台参比大流量采样器	7205	4.8	0.2
		待测超大流量采样器	14400		
2019/7/12	2019/7/16	1 台参比大流量采样器	11520	9.5	24 ¹⁾
		待测超大流量采样器	54417		
2019/7/16	2019/7/20	1 台参比大流量采样器	5960	3.8	14 ¹⁾
		待测超大流量采样器	56277		
2019/7/20	2019/7/24	1 台参比大流量采样器	6020	16	24 ¹⁾
		待测超大流量采样器	56898		

注：1) 比对测试期间空气质量较好，参比大流量采样器采集的样品净尘量较低。

为了保证采集的环境气溶胶样品的代表性和有效性，根据超大流量采样器样品采集滤膜流量变化实验结果（见表 5-4），参考环境空气颗粒物（PM₁₀ 和 PM_{2.5}）测定标准和法国标准 NF M 60-760 的相关规定，本标准程序规定：采样期间保持流量稳定，每小时平均流量变化±10%设定流量，采样全过程平均流量变化±5%设定流量。如采样器无流量设定功能，可将采样流量稳定后第 1 小时平均流量视为设定流量。推荐优先使用恒流且具有标准状态下采样体积功能的采样器。同时规定，采样期间

所有有关样品代表性和有效性的因素都应详细记录。

5.10.2 γ 能谱仪性能检查

参考了《 γ 谱仪检定规程》(JJG 417-2006)、《辐射环境监测技术规范》(HJ/T 61-2001)的相关规定,本标准 γ 能谱仪检验源测定规定:每月测定一次检验源,检验源测定值与效率刻度后首次检验源测定值的相对偏差应 $\leq 6\%$,否则应重做效率刻度。检查 γ 能谱内 ^{60}Co 1332 keV 能量分辨力(半高宽 FWHM)应满足 γ 能谱仪出厂规格,否则应查找原因。

5.10.3 样品重复测定

考虑到实施的可行性,本标准精密度控制采用样品复测的方法,为此,课题组统计了2016~2018年国控网气溶胶样品 γ 能谱分析复测结果,统计结果见表5-11。根据统计结果,本标准规定了样品重复测定 ^{7}Be 活度浓度的精密度要求。

表5-11 国控网气溶胶 γ 能谱分析样品重复测定相对偏差统计结果

^{7}Be 活度浓度 (mBq/m^3)	复测 样品数	相对偏差(%)			
		最小值	最大值	主要分布区间	平均值
≤ 0.5	22	0.13	16.9	0.42~11.8	3.7
$>0.5\sim 2$	106	0.12	18.6	0.40~6.3	2.8
$>2\sim 5$	137	0.01	19.1	0.26~4.8	2.2
>5	112	0.05	18.6	0.17~5.4	1.9

5.11 注意事项

样品 γ 能谱分析的注意事项引自《土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法》(GB/T 11743-2013)条款7.4。

考虑到特定情况下,需快速测定样品,根据样品氦子体衰变时间和测量时间对探测下限影响的实验结果,参考《IMS认证指南》和日本朝鲜核试验期间的测量方法,本标准建议:采样结束6小时后开始测量,测量时间一般不小于6小时或满足待测核素特征峰峰面积计数的统计误差小于5%。

对于需母子体核素达到平衡后再测量的核素，为了明确装样密封的时间，本课题组开展了 ^{226}Ra 与 ^{222}Rn 平衡计算，计算结果表明，当平衡时间为6个 ^{222}Rn 半衰期时， ^{222}Rn 的活度为 ^{226}Ra 的98%；当平衡时间为7个 ^{222}Rn 半衰期时， ^{222}Rn 的活度为 ^{226}Ra 的99%，根据计算结果，本标准规定：需母子体核素达到平衡后再测量的核素，在装样密封达到7个子体核素半衰期方可测量。

6 方法验证

6.1 方法验证方案

参与方法验证的实验室有：浙江省辐射环境监测站、辽宁省生态环境监测中心、江苏省核与辐射安全监督管理中心、山东省辐射环境管理站、广东省环境辐射监测中心、四川省辐射环境管理监测中心站、秦山环境应急监测中心。以上实验室均具有计量认证或实验室认可资质，分析人员具有中等以上操作水平且持有相关项目上岗证，实验设备符合方法要求。

依据《环境监测 分析方法标准制修订技术导则》（HJ 168-2010）的原则。结合环境空气气溶胶 γ 能谱分析实际情况，组织6家实验室开展了以下方法验证工作。

（1）方法探测下限

由浙江省辐射环境监测站统一提供符合标准程序规定的滤膜，4家实验室按照标准草案中的样品采集、制备、分析的全部步骤进行测定，其中用大流量采样器采集3个样品，用超大流量采样器采集3个样品，采样体积约为 10000m^3 左右，按照标准草案中探测下限的计算公式计算每个样品探测下限。

（2）精密度和准确度的验证

由于一般环境条件下，采集的气溶胶样品中 γ 放射性核素活度浓度高于探测下限的仅有 ^7Be 、 ^{210}Pb 等核素，而且多台采样器同步采样测定环境气溶胶样品中 ^7Be 活度浓度已通过比对测试实验予以验证，因此，精密度和准确度的验证实验由浙江省辐射环境监测站统一提供3个不同活度浓度的气溶胶实际加标样品，样品加入混合 γ 放射性核素标准物质，分发给各实验室，6家实验室按照标准草案中样品分析的全

部步骤进行测定，每个样品平行测定6次。分别计算低中高三个不同活度样品的平均值、标准偏差、相对标准偏差和加标回收率。

6.2 方法验证过程

筛选有资质的验证单位，向验证单位提供方法验证草案、标准草案。验证单位按照方法验证草案准备实验用品，在规定时间内完成验证实验并编制了方法验证报告，反馈了验证过程中的问题和解决方法。

6.3 方法验证结论

(1) 探测下限

4家实验室的验证实验表明，当取样量约为10000m³时，各核素的探测下限范围分别为：⁷Be，18.1~46.2 μBq/m³；⁴⁰K，20.4~79.4 μBq/m³；⁵⁴Mn，1.9~3.5 μBq/m³；⁵⁸Co，2.2~3.9 μBq/m³；⁶⁰Co，2.3~4.1 μBq/m³；⁹⁵Zr，3.5~8.5 μBq/m³；¹³¹I，1.9~29 μBq/m³；¹³⁴Cs，1.9~3.4 μBq/m³；¹³⁷Cs，2.1~3.7 μBq/m³；¹⁴⁰Ba，8.2~41 μBq/m³；¹⁴⁴Ce，8.8~34.7 μBq/m³；²¹⁰Pb，22.8~58.8 μBq/m³；²²⁸Ac，8.4~18.4 μBq/m³；²³⁴Th，14.8~61.0 μBq/m³，除个别样品由于采样结束至测量开始时间间隔远大于本标准草案的规定，受衰变校正的影响，样品中¹³¹I的探测下限偏高外，其余样品中各核素的探测下限均小于标准规定的最高探测下限。

(2) 方法精密度

7家实验室的验证实验表明，低活度、中活度、高活度的混合γ放射性核素加标样品（含²⁴¹Am、⁵⁷Co、¹³⁹Ce、¹¹³Sn、¹³⁷Cs、⁵⁴Mn、⁸⁸Y、⁶⁵Zn、⁶⁰Co共9种核素），实验室内相对偏差分别为0.1%~6.3%、0.1%~5.2%、0.1%~4.7%，实验室间相对标准偏差分别为0.8%~2.2%、0.9%~2.8%、1.3%~3.4%，重复性限分别为3.2Bq~1.0E2Bq、7Bq~2.5E2Bq、11Bq~4E2Bq，再现性限分别为4.2Bq~1.2E2Bq、8Bq~3.5E2Bq、18Bq~8E2Bq。

(3) 方法准确度

7家实验室的验证实验表明,低活度、中活度、高活度的混合 γ 放射性核素加标样品(含 ^{241}Am 、 ^{57}Co 、 ^{139}Ce 、 ^{113}Sn 、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn 、 ^{88}Y 、 ^{65}Zn 、 ^{60}Co 共9种核素),加标回收率分别为95.8%~102.5%、96.0%~104.3%、94.1%~105.2%,加标回收率的均值分别为98.1%~100.4%、98.2%~100.4%、97.0%~99.4%,加标回收率的标准偏差分别为0.8%~2.1%、0.8%~2.8%、1.3%~3.3%。

综上所述,方法的探测下限、精密度、准确度等各项指标满足方法特性指标要求。

7 与开题报告的差异说明

2019年3月29日,《环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的测定 γ 能谱法》开题论证会上,评审专家组建议将“测定”修改为“测量”,本标准《环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的测定 γ 能谱法》变更为《环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的测量 γ 能谱法》。其他与开题报告无差异。

8 标准实施建议

本标准适用于环境空气气溶胶中 γ 放射性核素的测量,应急情况下,亦可作为参考。

9 参考文献

- [1] 原中华人民共和国卫生部,原国家环境保护总局,原中国核工业总公司.《电离辐射防护与辐射源安全基本标准》:GB 18871-2002[S].北京:中国标准出版社,2002.
- [2] 中国核工业集团公司.《铀矿冶辐射防护和环境保护规定》:GB 23727-2009[S].北京:中国标准出版社,2009.
- [3] 中国核工业集团公司.《铀加工与燃料建造设施辐射防护规定》:EJ 1056-2005[S].北京:中国标准出版社,2005.
- [4] 环境保护部科技标准司,环境保护部核安全管理司.《核动力厂环境辐射防护规定》:GB 6249-2011[S].北京:中国环境科学出版社,2011.
- [5] 中华人民共和国卫生和计划生育委员会.《高纯锗 γ 能谱分析通用方法》:GB/T 11713-2015[S].

- [6] 中华人民共和国卫生和计划生育委员会.《水中放射性核素的 γ 能谱分析方法:GB/T 16140-2018
- [7] 原中华人民共和国卫生部.《土壤中放射性核素的 γ 能谱分析方法》:GB/T 11743-2013[S]. 北京:中国标准出版社,2013.
- [8] 原中华人民共和国卫生部.《生物样品中放射性核素的 γ 能谱分析方法》:GB/T 16145-1995[S]. 北京:中国标准出版社,1995.
- [9] 原国家环境保护总局科技标准司.《总悬浮颗粒物采样器技术要求及检测方法》:HJ/T 374-2007[S]. 北京:中国环境科学出版社,2007.
- [10] 环境保护部科技标准司.《环境监测 分析方法标准制订技术导则》:HJ 168-2010[S]. 北京:中国环境科学出版社,2010.
- [11] CTBTO. Certification of IMS particulate radionuclide stations (with guidelines for station installation): CTBT/PTS/INF. 58/REV. 8:2007.
- [12] Station specific operational manual : IMS-CNP REV. 0 : 2009.
- [13] Procedure for determining airborne particulate radionuclides in air near the ground by gamma spectrometry (Procedures manual for monitoring of radioactive substances in the environment and of external radiation : A- γ -SPEKT-AEROS-01 : ISSN 1865-8725 : 2000[S].
- [14] 文部科学省科学技术・学术政策局.環境試料採取法:放射能測定法シリーズ 16:昭和58年[S].
- [15] 文部科学省科学技术・学术政策局.ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法:放射能測定法シリーズ 13:昭和57年[S].
- [16] 文部科学省科学技术・学术政策局.緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法:放射能測定法シリーズ 24:平成4年[S].
- [17] 文部科学省科学技术・学术政策局.ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー:放射能測定法シリーズ 7:平成4年[S].
- [18] U.S. Department of Energy. EML Procedures Manual: HASL-300 Rev. 0:1997.
- [19] EPA. Expansion and Upgrade of the RadNet Air Monitoring Network Volume 1 of 2: Conceptual Plan and Implementation Process, Office of Radiation and Indoor Air:2012.

- [20] 国家卫生标准委员会放射卫生标准专业委员会. 空气中放射性核素的 γ 能谱分析方法:WS/T 184-2017[S]. 北京: 中国标准出版社, 2017.
- [21] 环境保护局科技标准司. 环境空气总悬浮颗粒物的测定重量法:GB/T 15432-1995[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 1995.
- [22] 环境保护部环境监测司和科技标准司. 环境空气质量手工监测技术规范:HJ 194-2017[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2017.
- [23] 环境保护部科技标准司. 环境空气颗粒物 (PM_{10} 和 $PM_{2.5}$) 采样器技术要求及检测方法:HJ 93-2013[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2013.
- [24] 吴艳敏, 王旭辉, 刘龙波, 刘蜀疆. 高流速下气溶胶取样滤材的性能测试[J]. 辐射防护, 2009(1): 13-17.
- [25] 全国环境化学计量技术委员会. 总悬浮颗粒物采样器检定规程:JJG 943-2011[S]. 北京: 中国质检出版社, 2011.
- [26] 环境保护部科技标准司. 环境空气 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 的测定重量法:HJ 618-2011[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2011.
- [27] 环境保护部科技标准司. 环境空气颗粒物 (PM_{10} 和 $PM_{2.5}$) 连续自动监测系统技术要求及检测方法:HJ 653-2013[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2013.
- [28] 环境保护部科技标准司. 环境空气颗粒物 (PM_{10} 和 $PM_{2.5}$) 连续自动监测系统安装和验收技术规范:HJ 655-2013[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2013.
- [29] 环境保护部科技标准司. 环境空气颗粒物 ($PM_{2.5}$) 手工监测方法 (重量法) 技术规范:HJ 656-2013[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2013.
- [30] 原国家环境保护总局科技标准司. 《辐射环境监测技术规范》:HJ/T 61-2001[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2001.
- [31] 中国制冷空调工业协会. 《高效空气过滤器及滤材 第 3 部分: 滤纸试验》:T/CRAA 431.3-2017[S].
- [32] 环境保护局科技标准司. 环境空气质量自动监测技术规范 (部分被 HJ 655-2013 代替):HJ/T 193-2005[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2005.
- [33] 环境保护部科技标准司. 环境监测质量管理技术导则:HJ 630-2011[S]. 北京: 中国环境科学出版社, 2011

附件 2-1

方法验证报告

方法名称：环境空气 气溶胶中 γ 放射性核素的测量 γ 能谱法

项目主编单位：浙江省辐射环境监测站（辐射环境监测技术中心）

验证单位：辽宁省核与辐射监测中心、江苏省核与辐射安全监督管理中心、山东省辐射环境管理站、广东省环境辐射监测中心、四川省辐射环境管理监测中心站、秦山环境应急监测中心、浙江省辐射环境监测站

项目负责人及职称：王蕾（教授级高工）

通讯地址：杭州市文一路 306 号 1011 室 电话：0571-28869226

报告编写人及职称：郑国栋（高级工程师）、羊佳（高级工程师）

报告日期：2019 年 9 月 26 日

1 原始测试数据

1.1 实验室基本情况

参与方法验证的实验室及人员、仪器情况见附表 1-1 和附表 1-2。其中，实验室编号 1 为辽宁省核与辐射监测中心；实验室编号 2 为江苏省核与辐射安全监督管理中心；实验室编号 3 为山东省辐射环境管理站；实验室编号 4 为广东省环境辐射监测中心；实验室编号 5 为四川省辐射环境管理监测中心站、实验室编号 6 为秦山环境应急监测中心；实验室编号 7 为浙江省辐射环境监测站。

附表 1-1 参与方法验证的人员情况登记表

姓名	验证单位	性别	年龄	职务 或职称	所学专业	从事相关分 析工作年限
刘军	辽宁省生态 环境监测中心	男	29	工程师	辐射防护与环境工程	7 年
关庆涛		男	32	工程师	核燃料与核化工	7 年
刘迁顺		男	33	工程师	核能与核技术工程	7 年
蒋若澄	江苏省核与辐射安全 监督管理中心	男	31	主任科员	粒子物理与原子核物理	5 年
史蕾	山东省辐射环境 管理站	女	34	工程师	原子与分子物理	9 年
常明杰		男	32	助工	核物理	8 年
乔冕		男	34	高工	理论物理	9 年
屈加燕		女	33	工程师	测控技术与仪器	6 年
陈文涛	广东省环境辐射 监测中心	男	33	工程师	应用化学	9 年
陈万良		男	27	助理工程师	核能与核技术工程	3 年
李雪泓	四川省辐射环境管理 监测中心站	女	38	高工	核能科学与工程	7 年
杜云武		男	49	教授级高工	粒子物理与原子核物理	13 年
孙垭杰	秦山环境应急 监测中心	男	33	高工	物理	11 年
颜华		男	34	高工	核物理	10 年
郑国栋	浙江省辐射环境监测站	男	41	高工	物理	17 年
羊佳		男	38	高工	粒子物理与原子核物理	12 年

附表 1-2 使用仪器情况登记表

验证单位	采样器型号		高纯锗 γ 能谱仪型号
辽宁省生态环境监测中心	大流量采样器	JL-150 HUNTER	GMX40P
	超大流量采样器	Snow white	GEM45P
江苏省核与辐射安全 监督管理中心	大流量采样器	KB-1000	BE5030
	超大流量采样器	JL-900	
山东省辐射环境 管理站	大流量采样器	NC-MDS-150	GMX60P4-83
	超大流量采样器	RX302	GEM-C7080
广东省环境辐射监测中心	大流量采样器	TH-1000CII	GC4019
	超大流量采样器	HRHA01-SFS800/A	
四川省辐射环境管理 监测中心站	大流量采样器	CF1003	BE6530
	超大流量采样器	HRHA01-SFS800/A	
泰山环境应急监测中心	超大流量采样器	森雅 JL-900	GC8021
浙江省辐射环境监测站	大流量采样器	TH-1000CII	GMX60P4
	超大流量采样器	HRHA01-SFS800/A	GEM-S8530

1.2 方法探测下限测试数据

4 家实验室按照标准草案中样品采集、制备、分析全部步骤测定，其中用大流量采样器采集 3 个样品，用超大流量采样器采集 3 个样品，采样体积约为 10000m^3 左右，按照标准草案中探测下限的计算公式计算每个样品探测下限，测试数据见附表 1-3。

附表 1-3 方法探测下限测试数据表

验证单位：辽宁省生态环境监测中心

测试日期：2019 年 5 月

样品编号		超大流量采样器采集样品			大流量采样器采集样品		
		1	2	3	4	5	6
测定结果 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)	^7Be	21.4	19.7	19.5	18.6	20.9	18.1
	^{40}K	79.4	73.0	72.3	69.0	77.5	67.2
	^{54}Mn	2.4	2.2	2.2	2.0	2.3	2.0
	^{58}Co	2.6	2.4	2.3	2.2	2.5	2.2
	^{60}Co	3.8	3.5	3.4	3.3	3.7	3.2
	^{95}Zr	4.2	3.8	3.8	3.6	4.1	3.5
	^{131}I	3.6	3.3	3.3	3.1	3.5	3.0
	^{134}Cs	2.6	2.4	2.4	2.3	2.5	2.2
	^{137}Cs	2.8	2.5	2.5	2.4	2.7	2.3
	^{140}Ba	9.7	8.9	8.8	8.4	9.4	8.2
	^{144}Ce	34.7	31.9	31.6	30.2	33.9	29.4
	^{210}Pb	38.0	35.0	34.6	33.0	37.1	32.2
	^{228}Ac	12.7	11.7	11.6	11.0	12.4	10.8
^{234}Th	38.0	35.0	34.6	33.0	37.1	32.2	

附表 1-3 方法探测下限测试数据表

验证单位：江苏省核与辐射安全监督管理中心

测试日期：2019 年 7 月~8 月

样品编号		超大流量采样器采集样品			大流量采样器采集样品		
		1	2	3	4	5	6
测定结果 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)	^7Be	26.8	26.1	30.1	23.8	22.6	20.5
	^{40}K	34.7	23.4	32.9	20.4	31.4	33.8
	^{54}Mn	2.4	2.5	2.6	1.9	2.1	2.1
	^{58}Co	2.8	2.8	2.8	2.4	2.3	2.3
	^{60}Co	2.9	3.0	2.8	2.6	2.3	2.4
	^{95}Zr	5.2	4.9	5.0	4.3	4.1	4.0
	^{131}I	2.6	2.6	2.6	2.4	2.2	1.9
	^{134}Cs	2.4	2.3	2.4	2.0	1.9	2.0
	^{137}Cs	2.8	2.4	2.4	2.3	2.2	2.1
	^{140}Ba	24.7	24.5	24.7	21.0	17.7	15.4
	^{144}Ce	13.0	12.3	12.3	11.5	10.6	8.8
	^{210}Pb	38.8	38.4	35.0	34.4	31.9	22.8
	^{228}Ac	10.4	10.4	10.1	9.0	8.6	8.4
^{234}Th	23.1	21.9	21.4	19.5	18.8	14.8	

附表 1-3 方法探测下限测试数据表

验证单位：山东省辐射环境管理站

测试日期：2019 年 5 月

样品编号		超大流量采样器采集样品			大流量采样器采集样品		
		1	2	3	4	5	6
测定结果 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)	^7Be	33.7	46.2	41.1	35.7	40.5	40.5
	^{40}K	72.3	73.6	72.5	73.4	73.7	73.4
	^{54}Mn	3.5	3.2	3.2	3.3	3.3	3.2
	^{58}Co	3.9	3.6	3.7	3.6	3.4	3.5
	^{60}Co	3.8	4.1	3.9	4.1	3.2	3.7
	^{95}Zr	8.2	8.5	7.6	7.2	7.0	7.4
	^{131}I	12.7	15.1	13.2	9.4	9.7	9.4
	^{134}Cs	3.1	3.3	3.4	3.2	3.2	3.4
	^{137}Cs	3.6	3.6	3.5	3.7	3.4	3.5
	^{140}Ba	28.8	31.1	28.1	22.9	22.7	21.9
	^{144}Ce	15.3	16.8	16.2	15.3	16.0	16.1
	^{210}Pb	56.8	58.8	57.9	56.5	58.1	58.8
	^{228}Ac	18.1	18.1	18.1	18.4	18.3	17.9
^{234}Th	59.8	60.9	60.4	59.1	60.3	61.0	

附表 1-3 方法探测下限测试数据表

验证单位：广东省环境辐射监测中心

测试日期：2019 年 6 月

样品编号		超大流量采样器采集样品			大流量采样器采集样品		
		1	2	3	4	5	6
测定结果 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)	^7Be	42	43	36	33	36	33
	^{40}K	38	40	39	33	35	36
	^{54}Mn	2.7	2.7	2.6	2.3	2.4	2.5
	^{58}Co	3.3	3.2	2.8	2.6	2.8	2.6
	^{60}Co	2.9	2.9	2.6	2.3	2.6	2.5
	^{95}Zr	6.2	6.0	5.5	4.9	5.1	4.7
	^{131}I	29	27	10	16	15	7.1
	^{134}Cs	2.4	2.3	2.3	1.9	2.1	2.2
	^{137}Cs	2.5	2.5	2.6	2.1	2.5	2.5
	^{140}Ba	41	40	21	26	25	16
	^{144}Ce	13	13	12	11	12	11
	^{210}Pb	41	42	39	34	38	39
	^{228}Ac	14	14	15	12	14	14
^{234}Th	42	43	41	35	40	40	

1.3 方法精密度和准确度测试数据

由浙江省辐射环境监测站统一提供 3 个不同活度的气溶胶实际加标样品，样品加入混合 γ 放射性核素标准物质，分发给各实验室，7 家实验室按照标准草案中样品分析的全部步骤进行测定，每个样品平行测定 6 次。分别计算低中高三个不同活度样品的平均值、标准偏差、相对标准偏差和加标回收率，精密度和准确度测试数据见附表 1-5~附表 1-7。

附表 1-5 低活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：辽宁省生态环境监测中心

测试日期：2019 年 7 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	286	276	278	276	274	274	277	5	1.6%	278.2	99.7%
¹⁰⁹ Cd	3.57E3	3.60E3	3.60E3	3.51E3	3.42E3	3.44E3	3.52E3	0.08E3	2.3%	3573	98.5%
⁵⁷ Co	80.9	85.8	78.5	78.3	80.7	80.6	80.8	3	3.4%	80.77	100.0%
¹³⁹ Ce	123	123	121	117	121	118	121	3	2.2%	121.3	99.4%
¹¹³ Sn	214	222	225	196	196	198	209	14	6.4%	210.4	99.1%
¹³⁷ Cs	102	108	109	100	99	100	103	5	4.5%	103.4	99.6%
⁵⁴ Mn	176	182	179	167	176	176	176	5	2.9%	177.1	99.5%
⁸⁸ Y	350	336	337	326	334	326	335	9	2.7%	345.9	96.8%
⁶⁰ Co	168	162	156	167	157	157	161	6	3.4%	161.3	99.8%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-5 低活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：江苏省核与辐射安全监督管理中心

测试日期：2019 年 5 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_1 (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	269	268	268	268	268	268	268	1	0.2%	278.2	96.4%
¹⁰⁹ Cd	3.46E3	3.45E3	3.47E3	3.46E3	3.47E3	3.46E3	3.46E3	0.01E3	0.2%	3573	96.8%
⁵⁷ Co	78.6	78.7	79.2	79.1	79.3	79.0	79.0	1	0.4%	80.77	97.8%
¹³⁹ Ce	120	120	119	120	119	119	120	1	0.4%	121.3	98.5%
¹¹³ Sn	204	204	205	206	205	204	205	1	0.4%	210.4	97.3%
¹³⁷ Cs	100	100	100	100	100	100	100	1	0.3%	103.4	96.7%
⁵⁴ Mn	173	173	172	172	172	172	172	1	0.4%	177.1	97.3%
⁸⁸ Y	346	345	342	341	343	345	344	3	0.7%	345.9	99.4%
⁶⁰ Co	157	157	156	157	157	157	157	1	0.2%	161.3	97.1%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-5 低活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：山东省辐射环境管理站

测试日期：2019 年 5 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_1 (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	276	274	274	275	276	276	275	1	0.4%	278.2	98.9%
¹⁰⁹ Cd	3.54E3	3.54E3	3.52E3	3.53E3	3.53E3	3.54E3	3.54E3	0.01E3	0.3%	3573	99.0%
⁵⁷ Co	80.3	80.5	80.4	80.5	80.3	79.8	80.3	1	0.4%	80.77	99.4%
¹³⁹ Ce	120	121	121	121	121	121	121	1	0.4%	121.3	99.6%
¹¹³ Sn	209	207	211	208	212	210	210	2	0.9%	210.4	99.6%
¹³⁷ Cs	104	104	104	104	104	104	104	1	0.3%	103.4	100.6%
⁵⁴ Mn	177	178	177	177	177	177	177	1	0.3%	177.1	99.8%
⁸⁸ Y	346	352	353	349	352	350	350	3	0.8%	345.9	101.3%
⁶⁰ Co	161	161	160	161	161	160	161	1	0.3%	161.3	99.6%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-5 低活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：广东省环境辐射监测中心

测试日期：2019 年 4 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值 \bar{x}_i (Bq)	标准偏差 S_i (Bq)	相对标准偏差 RSD_i	加标量 μ (Bq)	加标回收率 ¹ P_i
	1	2	3	4	5	6					
²⁴¹ Am	283	281	280	282	282	283	282	1	0.5%	278.2	101.0%
¹⁰⁹ Cd	3.53E3	3.53E3	3.52E3	3.50E3	3.52E3	3.53E3	3.52E3	0.02E3	0.4%	3573	98.4%
⁵⁷ Co	78.6	78.6	77.8	78.6	78.3	78.6	78.4	1	0.4%	80.77	97.1%
¹³⁹ Ce	119	118	120	120	118	119	119	1	0.9%	121.3	98.2%
¹¹³ Sn	203	207	206	206	206	203	205	2	1.0%	210.4	97.4%
¹³⁷ Cs	101	101	101	101	102	101	101	1	0.4%	103.4	97.8%
⁵⁴ Mn	175	174	174	172	173	175	174	1	0.6%	177.1	98.0%
⁸⁸ Y	347	350	347	348	346	347	348	1	0.4%	345.9	101.0%
⁶⁰ Co	160	159	158	159	160	160	159	2	1.2%	161.3	98.3%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-5 低活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：四川省辐射环境管理监测中心站

测试日期：2019 年 4 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值 \bar{x}_i (Bq)	标准偏差 S_i (Bq)	相对标准偏差 RSD_i	加标量 μ (Bq)	加标回收率 ¹ P_i
	1	2	3	4	5	6					
²⁴¹ Am	2.7E2	2.7E2	2.7E2	2.7E2	2.7E2	2.7E2	2.7E2	0.01E3	0.2%	278.2	97.1%
¹⁰⁹ Cd	3.5E3	3.4E3	3.4E3	3.5E3	3.5E3	3.5E3	3.5E3	0.1E3	0.5%	3573	98.0%
⁵⁷ Co	78	78	78	79	80	79	79	1	0.9%	80.77	97.8%
¹³⁹ Ce	1.2E2	1.2E2	1.2E2	1.2E2	1.2E2	1.2E2	1.2E2	0.1E2	1.2%	121.3	98.9%
¹¹³ Sn	2.1E2	2.1E2	2.1E2	2.1E2	2.0E2	2.1E2	2.1E2	0.1E2	0.6%	210.4	99.8%
¹³⁷ Cs	1.0E2	1.0E2	9.9E1	1.0E2	1.0E2	1.0E2	1.0E2	0.1E2	0.8%	103.4	96.7%
⁵⁴ Mn	1.7E2	1.8E2	1.7E2	1.7E2	1.7E2	1.7E2	1.7E2	0.1E2	1.1%	177.1	96.0%
⁸⁸ Y	3.4E2	3.5E2	3.5E2	3.4E2	3.5E2	3.5E2	3.5E2	0.1E2	1.0%	345.9	101.2%
⁶⁰ Co	1.6E2	1.6E2	1.6E2	1.6E2	1.6E2	1.6E2	1.6E2	0.1E2	0.8%	161.3	99.2%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-5 低活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：泰山环境应急监测中心

测试日期：2019 年 7 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值 \bar{x}_i (Bq)	标准偏差 S_i (Bq)	相对标准偏差 RSD_i	加标量 μ (Bq)	加标回收率 ¹ P_i
	1	2	3	4	5	6					
²⁴¹ Am	271	271	271	271	271	270	271	1	0.1%	278.2	97.4%
¹⁰⁹ Cd	3.49E3	3.48E3	3.50E3	3.48E3	3.50E3	3.49E3	3.49E3	0.01E3	0.3%	3573	97.6%
⁵⁷ Co	79	79	79	79	79	79	79	1	0.3%	80.77	97.8%
¹³⁹ Ce	117	119	120	119	119	119	119	1	0.9%	121.3	98.1%
¹¹³ Sn	206	207	207	205	207	206	206	1	0.5%	210.4	97.9%
¹³⁷ Cs	101	101	101	101	101	101	101	1	0.4%	103.4	97.7%
⁵⁴ Mn	175	175	175	174	176	176	175	1	0.5%	177.1	98.8%
⁸⁸ Y	348	345	349	350	356	345	349	4	1.2%	345.9	100.9%
⁶⁰ Co	156	157	157	158	157	158	157	1	0.4%	161.3	97.3%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-5 低活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：浙江省辐射环境监测站

测试日期：2019 年 8 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值 \bar{x}_i (Bq)	标准偏差 S_i (Bq)	相对标准偏差 RSD_i	加标量 μ (Bq)	加标回收率 ¹ P_i
	1	2	3	4	5	6					
²⁴¹ Am	280	285	285	282	283	284	283	3	0.8%	278.2	101.8%
¹⁰⁹ Cd	3.61E3	3.49E3	3.53E3	3.53E3	3.52E3	3.53E3	3.54E3	0.05E3	1.2%	3573	98.9%
⁵⁷ Co	79.8	80.9	81.3	82.1	81.5	81.8	81.2	1	1.0%	80.77	100.6%
¹³⁹ Ce	114	116	116	118	115	118	116	2	1.3%	121.3	95.8%
¹¹³ Sn	205	209	210	211	212	214	210	3	1.4%	210.4	99.9%
¹³⁷ Cs	99	101	101	101	101	101	101	2	1.1%	103.4	97.3%
⁵⁴ Mn	175	179	179	180	178	179	178	2	1.0%	177.1	100.8%
⁸⁸ Y	351	357	357	358	354	350	354	4	1.0%	345.9	102.5%
⁶⁰ Co	157	160	160	160	160	160	159	2	0.9%	161.3	98.8%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

附表 1-6 中活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：辽宁省生态环境监测中心

测试日期：2019 年 7 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	541	548	535	546	524	538	539	9	1.7%	548.6	98.2%
¹⁰⁹ Cd	6.86E3	7.10E3	6.87E3	6.70E3	6.59E3	6.64E3	6.79E3	0.19E3	2.8%	7045	96.4%
⁵⁷ Co	156	168	162	154	155	156	158	6	3.5%	159.3	99.4%
¹³⁹ Ce	239	246	237	234	231	236	237	5	2.1%	239.1	99.2%
¹¹³ Sn	407	427	405	406	383	394	404	15	3.7%	415.0	97.3%
¹³⁷ Cs	195	215	211	192	191	194	200	11	5.2%	203.8	98.0%
⁵⁴ Mn	342	358	347	338	341	345	345	7	2.1%	349.3	98.8%
⁸⁸ Y	678	658	659	653	640	642	655	14	2.2%	682.1	96.0%
⁶⁰ Co	327	319	315	321	300	302	314	11	3.5%	318.1	98.7%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-6 中活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：江苏省核与辐射安全监督管理中心

测试日期：2019 年 5 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	533	531	532	531	532	532	532	1	0.2%	548.6	97.0%
¹⁰⁹ Cd	6.86E3	6.84E3	6.85E3	6.84E3	6.84E3	6.83E3	6.84E3	0.01E3	0.2%	7045	97.2%
⁵⁷ Co	156	157	157	157	157	157	157	1	0.3%	159.3	98.3%
¹³⁹ Ce	236	236	237	237	236	238	236	1	0.4%	239.1	98.9%
¹¹³ Sn	407	406	408	408	409	408	408	1	0.3%	415.0	98.2%
¹³⁷ Cs	199	200	199	199	199	200	199	1	0.2%	203.8	97.8%
⁵⁴ Mn	341	342	341	342	341	343	342	1	0.3%	349.3	97.8%
⁸⁸ Y	681	682	684	678	681	682	681	3	0.3%	682.1	99.9%
⁶⁰ Co	311	310	309	311	311	309	310	1	0.3%	318.1	97.5%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-6 中活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：山东省辐射环境管理站

测试日期：2019 年 6 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	546	545	545	546	546	546	546	1	0.2%	548.6	99.5%
¹⁰⁹ Cd	6.97E3	6.97E3	6.97E3	6.99E3	6.96E3	6.97E3	6.97E3	0.01E3	0.2%	7045	99.0%
⁵⁷ Co	158	158	158	159	159	159	158	1	0.3%	159.3	99.5%
¹³⁹ Ce	241	239	238	238	240	238	239	2	0.5%	239.1	99.9%
¹¹³ Sn	418	411	411	415	416	418	415	4	0.8%	415.0	100.0%
¹³⁷ Cs	205	204	204	204	204	204	204	1	0.3%	203.8	100.3%
⁵⁴ Mn	352	350	348	348	349	346	349	3	0.6%	349.3	99.8%
⁸⁸ Y	685	686	697	682	690	698	690	7	1.0%	682.1	101.1%
⁶⁰ Co	317	318	318	316	316	316	317	1	0.3%	318.1	99.6%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-6 中活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：广东省环境辐射监测中心

测试日期：2019 年 4 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	555	562	565	564	565	565	563	4	0.7%	548.6	103.0%
¹⁰⁹ Cd	6.99E3	7.00E3	7.02E3	7.01E3	7.01E3	7.00E3	7.01E3	0.02E3	0.2%	7045	99.4%
⁵⁷ Co	156	157	157	156	156	156	156	1	0.4%	159.3	98.1%
¹³⁹ Ce	235	237	238	237	234	235	236	2	0.7%	239.1	98.7%
¹¹³ Sn	408	408	414	405	408	405	408	3	0.9%	415.0	98.3%
¹³⁷ Cs	201	202	201	202	201	202	202	1	0.3%	203.8	98.9%
⁵⁴ Mn	344	343	342	344	342	345	343	1	0.4%	349.3	98.3%
⁸⁸ Y	683	692	692	693	688	689	690	4	0.6%	682.1	101.0%
⁶⁰ Co	314	314	315	314	315	314	314	1	0.2%	318.1	98.8%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-6 中活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：四川省辐射环境管理监测中心站

测试日期：2019 年 4 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	5.4E2	5.3E2	5.4E2	5.4E2	5.4E2	5.4E2	5.4E2	0.1E2	0.4%	548.6	98.4%
¹⁰⁹ Cd	6.9E3	6.9E3	6.9E3	6.9E3	6.9E3	6.9E3	6.9E3	0.1E3	0.3%	7045	97.9%
⁵⁷ Co	1.6E2	1.6E2	1.6E2	1.6E2	1.6E2	1.6E2	1.6E2	0.1E2	0.4%	159.3	100.4%
¹³⁹ Ce	2.4E2	2.4E2	2.4E2	2.4E2	2.4E2	2.4E2	2.4E2	0.1E2	1.0%	239.1	100.4%
¹¹³ Sn	4.0E2	4.1E2	4.1E2	4.1E2	4.1E2	4.1E2	4.1E2	0.1E2	0.8%	415.0	98.8%
¹³⁷ Cs	2.0E2	2.0E2	2.0E2	2.0E2	2.0E2	2.0E2	2.0E2	0.1E2	0.7%	203.8	98.1%
⁵⁴ Mn	3.4E2	3.4E2	3.4E2	3.4E2	3.4E2	3.4E2	3.4E2	0.1E2	0.5%	349.3	97.3%
⁸⁸ Y	6.9E2	6.9E2	7.1E2	6.9E2	6.9E2	6.9E2	6.9E2	0.1E2	1.0%	682.1	101.2%
⁶⁰ Co	3.1E2	3.1E2	3.1E2	3.1E2	3.1E2	3.1E2	3.1E2	0.1E2	0.5%	318.1	97.5%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-6 中活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：秦山环境应急监测中心

测试日期：2019 年 7 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	533	535	534	538	534	535	535	2	0.3%	548.6	97.5%
¹⁰⁹ Cd	6.90E3	6.87E3	6.88E3	6.83E3	6.87E3	6.87E3	6.87E3	0.03E3	0.4%	7045	97.5%
⁵⁷ Co	156	156	156	155	157	157	156	1	0.5%	159.3	97.9%
¹³⁹ Ce	234	238	234	238	234	235	236	3	1.0%	239.1	98.7%
¹¹³ Sn	408	415	407	412	407	407	409	4	0.9%	415.0	98.6%
¹³⁷ Cs	200	200	200	201	202	199	201	1	0.5%	203.8	98.6%
⁵⁴ Mn	347	346	346	346	348	344	346	2	0.4%	349.3	99.1%
⁸⁸ Y	689	687	684	684	687	694	688	4	0.6%	682.1	100.9%
⁶⁰ Co	310	309	311	309	309	311	310	2	0.4%	318.1	97.5%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-6 中活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：浙江省辐射环境监测站

测试日期：2019 年 8 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	560	583	561	562	583	584	572	13	2.2%	548.6	104.3%
¹⁰⁹ Cd	6.96E3	7.14E3	6.97E3	6.98E3	7.01E3	7.28E3	7.06E3	0.13E3	1.9%	7045	100.1%
⁵⁷ Co	160	160	160	158	161	159	160	1	0.6%	159.3	100.2%
¹³⁹ Ce	230	229	229	229	231	231	230	2	0.5%	239.1	96.0%
¹¹³ Sn	412	408	436	416	424	414	418	11	2.5%	415.0	100.8%
¹³⁷ Cs	199	198	197	197	196	198	197	1	0.5%	203.8	96.9%
⁵⁴ Mn	353	354	350	354	354	350	352	2	0.6%	349.3	100.9%
⁸⁸ Y	708	701	703	707	700	701	703	4	0.5%	682.1	103.1%
⁶⁰ Co	313	314	315	312	313	314	314	2	0.4%	318.1	98.6%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

附表 1-7 高活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：辽宁省生态环境监测中心

测试日期：2019 年 7 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	835	819	825	831	807	807	821	12	1.5%	827.9	99.1%
¹⁰⁹ Cd	1.03E4	1.06E4	1.06E4	1.02E4	9.98E3	1.00E4	1.03E4	0.03E4	2.7%	1.063E4	96.7%
⁵⁷ Co	237	250	249	234	236	236	240	8	3.0%	240.3	100.0%
¹³⁹ Ce	361	370	356	348	354	354	357	8	2.2%	360.8	99.0%
¹¹³ Sn	615	661	637	595	599	594	617	27	4.4%	626.3	98.5%
¹³⁷ Cs	292	319	319	294	291	290	301	15	4.7%	307.5	97.8%
⁵⁴ Mn	514	540	537	509	518	520	523	13	2.5%	527.1	99.2%
⁸⁸ Y	1.00E3	1.01E3	987	977	979	984	991	15	1.5%	1029	96.3%
⁶⁰ Co	497	480	485	488	463	462	479	15	3.0%	479.9	99.8%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-7 高活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：江苏省核与辐射安全监督管理中心

测试日期：2019 年 5 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	793	793	794	794	793	793	793	1	0.1%	827.9	95.8%
¹⁰⁹ Cd	1.02E4	1.02E4	1.02E4	1.02E4	1.02E4	1.02E4	1.02E4	0.01E4	0.2%	1.063E4	95.9%
⁵⁷ Co	234	234	234	235	234	235	234	1	0.2%	240.3	97.6%
¹³⁹ Ce	355	354	355	354	354	355	354	1	0.2%	360.8	98.2%
¹¹³ Sn	608	607	607	606	607	609	607	2	0.2%	626.3	97.0%
¹³⁷ Cs	296	296	296	296	295	297	296	1	0.2%	307.5	96.2%
⁵⁴ Mn	509	507	509	507	509	509	508	2	0.2%	527.1	96.4%
⁸⁸ Y	1.02E3	1.02E3	1.02E3	1.02E3	1.02E3	1.02E3	1.02E3	0.01E3	0.3%	1029	99.2%
⁶⁰ Co	464	464	463	463	463	464	463	1	0.1%	479.9	96.6%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-7 高活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：山东省辐射环境管理站

测试日期： 2019 年 5 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_1 (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	816	815	815	816	816	817	816	1	0.1%	827.9	98.5%
¹⁰⁹ Cd	1.04E4	1.04E4	1.04E4	1.04E4	1.04E4	1.04E4	1.04E4	0.01E4	0.2%	1.063E4	98.1%
⁵⁷ Co	237	237	238	238	237	237	237	1	0.2%	240.3	98.8%
¹³⁹ Ce	357	357	359	357	360	357	358	2	0.5%	360.8	99.1%
¹¹³ Sn	618	619	620	621	622	625	621	3	0.5%	626.3	99.1%
¹³⁷ Cs	305	306	305	306	305	307	306	1	0.3%	307.5	99.3%
⁵⁴ Mn	527	522	522	523	527	527	525	3	0.5%	527.1	99.5%
⁸⁸ Y	1.04E3	1.03E3	1.03E3	1.04E3	1.03E3	1.04E3	1.04E3	0.01E3	0.4%	1029	100.8%
⁶⁰ Co	477	477	475	474	475	476	476	2	0.3%	479.9	99.1%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-7 高活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：广东省环境辐射监测中心

测试日期： 2019 年 4 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_1 (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	841	839	843	839	828	837	838	5	0.7%	827.9	101.0%
¹⁰⁹ Cd	1.04E4	1.04E4	1.04E4	1.05E4	1.04E4	1.04E4	1.04E4	0.01E4	0.3%	1.063E4	98.0%
⁵⁷ Co	232	232	232	234	233	233	233	1	0.4%	240.3	96.8%
¹³⁹ Ce	353	352	356	353	354	350	353	2	0.6%	360.8	97.8%
¹¹³ Sn	602	609	613	608	608	610	608	4	0.6%	626.3	97.2%
¹³⁷ Cs	301	303	299	298	299	302	300	2	0.7%	307.5	97.7%
⁵⁴ Mn	512	512	513	513	514	513	513	1	0.2%	527.1	97.3%
⁸⁸ Y	1.03E3	1.04E3	1.03E3	1.03E3	1.02E3	1.02E3	1.03E3	0.01E3	0.8%	1029	99.9%
⁶⁰ Co	472	473	468	471	469	470	471	2	0.4%	479.9	98.0%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-7 高活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：四川省辐射环境管理监测中心站

测试日期：2019 年 4 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_1 (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	8.0E2	8.0E2	8.1E2	8.1E2	8.1E2	8.1E2	8.1E2	0.1E2	0.3%	827.9	97.8%
¹⁰⁹ Cd	1.0E4	1.0E4	1.0E4	1.0E4	1.0E4	1.0E4	1.0E4	0.1E4	0.2%	1.063E4	94.1%
⁵⁷ Co	2.3E2	2.3E2	2.3E2	2.3E2	2.3E2	2.3E2	2.3E2	0.1E2	0.3%	240.3	95.7%
¹³⁹ Ce	3.5E2	3.6E2	3.5E2	3.6E2	3.6E2	3.6E2	3.6E2	0.1E2	0.9%	360.8	99.8%
¹¹³ Sn	6.0E2	6.1E2	6.1E2	6.0E2	6.1E2	6.1E2	6.1E2	0.1E2	0.7%	626.3	97.4%
¹³⁷ Cs	3.0E2	3.0E2	3.0E2	3.0E2	3.0E2	3.0E2	3.0E2	0.1E2	0.6%	307.5	97.6%
⁵⁴ Mn	5.2E2	5.1E2	5.2E2	5.2E2	5.2E2	5.1E2	5.1E2	0.1E2	0.3%	527.1	96.8%
⁸⁸ Y	1.0E3	1.1E3	1.1E3	1.0E3	1.0E3	1.0E3	1.0E3	0.1E3	1.1%	1029	97.2%
⁶⁰ Co	4.7E2	4.7E2	4.7E2	4.7E2	4.7E2	4.7E2	4.7E2	0.1E2	0.4%	479.9	97.9%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-7 高活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：秦山环境应急监测中心

测试日期：2019 年 7 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_1 (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	794	790	796	791	793	793	793	2	0.3%	827.9	95.8%
¹⁰⁹ Cd	1.02E4	1.01E4	1.01E4	1.01E4	1.01E4	1.02E4	1.01E4	0.01E4	0.4%	1.063E4	95.4%
⁵⁷ Co	232	231	231	231	232	231	231	1	0.2%	240.3	96.1%
¹³⁹ Ce	343	345	345	352	343	349	346	4	1.1%	360.8	95.9%
¹¹³ Sn	594	603	605	617	589	606	602	10	1.7%	626.3	96.1%
¹³⁷ Cs	296	293	295	296	296	296	295	2	0.5%	307.5	95.9%
⁵⁴ Mn	520	516	508	507	508	513	512	6	1.1%	527.1	97.1%
⁸⁸ Y	1.00E3	1.02E3	1.02E3	1.01E3	1.01E3	9.90E2	1.01E3	0.02E3	1.1%	1029	98.0%
⁶⁰ Co	462	462	463	461	465	459	462	2	0.5%	479.9	96.3%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

续附表 1-7 高活度实际加标样品精密度和准确度测试数据

验证单位：浙江省辐射环境监测站

测试日期：2019 年 8 月

目标 核素	测定值 (Bq)						平均值	标准偏差	相对标准偏差	加标量 μ	加标回收率 ¹
	1	2	3	4	5	6	\bar{x}_i (Bq)	S_i (Bq)	RSD_i	(Bq)	P_i
²⁴¹ Am	854	851	885	878	877	879	871	15	1.7%	827.9	105.2%
¹⁰⁹ Cd	1.05E4	1.05E4	1.08E4	1.09E4	1.09E4	1.09E4	1.07E4	0.02E4	1.8%	1.063E4	101.1%
⁵⁷ Co	241	239	242	252	253	253	247	7	2.7%	240.3	102.6%
¹³⁹ Ce	348	344	349	360	361	358	353	8	2.1%	360.8	97.9%
¹¹³ Sn	622	618	619	646	644	646	633	15	2.3%	626.3	101.0%
¹³⁷ Cs	301	300	302	311	312	309	306	6	1.8%	307.5	99.5%
⁵⁴ Mn	531	534	536	552	552	556	543	11	2.1%	527.1	103.1%
⁸⁸ Y	1.06E3	1.06E3	1.06E3	1.07E3	1.08E3	1.09E3	1.07E3	0.02E3	1.4%	1029	104.1%
⁶⁰ Co	478	483	479	491	491	491	486	7	1.4%	479.9	101.2%

注：1 实际样品中目标核素均未检出。

1.4 其他需要说明的问题

(1) 测试中的异常或意外情况

个别样品由于采样结束至测量开始时间间隔远大于本标准草案的规定，受衰变校正的影响，样品中 ¹³¹I 的探测下限偏高。

(2) 对方法适用性、分析步骤、干扰消除等方面的意见和建议

无

2 方法验证数据汇总

2.1 方法探测下限

4 家实验室探测下限数据汇总见附表 2-1。

附表 2-1 探测下限汇总表

实验室号 目标核素	探测下限 ($\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)			
	1 号	2 号	3 号	4 号
^7Be	18.1~21.4	20.5~30.1	33.7~46.2	33~43
^{40}K	67.2~79.4	20.4~34.7	72.3~73.7	33~40
^{54}Mn	2.0~2.4	1.9~2.6	3.2~3.5	2.3~2.7
^{58}Co	2.2~2.6	2.3~2.8	3.4~3.9	2.6~3.3
^{60}Co	3.2~3.8	2.7~3.0	3.2~4.1	2.3~2.9
^{95}Zr	3.5~4.2	4.0~5.2	7.0~8.5	4.7~6.2
^{131}I	3.0~3.6	1.9~2.6	9.4~15.1	7.1~29
^{134}Cs	2.2~2.6	1.9~2.4	3.1~3.4	1.9~2.4
^{137}Cs	2.3~2.8	2.1~2.8	3.4~3.7	2.1~2.6
^{140}Ba	8.2~9.7	15.4~24.7	21.9~31.1	16~41
^{144}Ce	29.4~34.7	8.8~13.0	15.3~16.8	11~13
^{210}Pb	32.2~38.0	22.8~38.8	56.5~58.8	34~42
^{228}Ac	10.8~12.7	8.4~10.4	17.9~18.4	12~15
^{234}Th	32.2~38.0	14.8~23.1	59.1~61.0	35~43

结论：4 家实验室按照标准草案中样品采集、制备和分析的全部步骤进行测定并计算样品的探测下限，除个别样品由于采样结束至测量开始时间间隔远大于本标准草案的规定，受衰变校正的影响，样品中 ^{131}I 的探测下限偏高外，其余样品中各核素的探测下限均小于标准规定的最高探测下限。

2.2 方法精密度

7 家实验室实际加标样品精密度数据汇总见附表 2-3。

附表 2-3 实际加标样品精密度测试数据汇总表

核素	实验室号	低活度			中活度			高活度		
		\bar{x}_i	S_i	RSD_i	\bar{x}_i	S_i	RSD_i	\bar{x}_i	S_i	RSD_i
^{241}Am	1	277	5	1.6%	539	9	1.7%	821	12	1.5%
	2	268	1	0.2%	532	1	0.2%	793	1	0.1%
	3	275	1	0.4%	546	1	0.2%	816	1	0.1%
	4	282	1	0.5%	563	4	0.7%	838	5	0.7%
	5	2.7E2	0.1E2	0.2%	5.4E2	0.1E2	0.4%	8.1E2	0.1E2	0.3%
	6	271	1	0.1%	535	2	0.3%	793	2	0.3%
	7	283	3	0.8%	572	13	2.2%	871	15	1.7%
	$\bar{\bar{X}}$	275			547			820		
	S'	6			16			28		
	RSD'	2.2%			2.8%			3.4%		
	重复性限 r	6			17			21		
再现性 R	18			46			79			
^{109}Cd	1	3.52E3	0.08E3	2.3%	6.79E3	0.19E3	2.8%	1.03E4	0.03E4	2.7%
	2	3.46E3	0.01E3	0.2%	6.84E3	0.01E3	0.2%	1.02E4	0.01E4	0.2%
	3	3.54E3	0.01E3	0.3%	6.97E3	0.01E3	0.2%	1.04E4	0.01E4	0.2%
	4	3.52E3	0.02E3	0.4%	7.01E3	0.02E3	0.2%	1.04E4	0.01E4	0.3%
	5	3.5E3	0.1E3	0.5%	6.9E3	0.1E3	0.3%	1.0E4	0.1E4	0.2%
	6	3.49E3	0.01E3	0.3%	6.87E3	0.03E3	0.4%	1.01E4	0.01E4	0.4%
	7	3.54E3	0.05E3	1.2%	7.06E3	0.13E3	1.9%	1.07E4	0.02E4	1.8%
	$\bar{\bar{X}}$	3.51E3			6.92E3			1.03E4		
	S'	0.03E3			0.10E3			0.03E4		
	RSD'	0.8%			1.4%			2.4%		
	重复性限 r	0.10E3			0.25E3			0.04E4		
再现性 R	0.12E3			0.35E3			0.08E4			
^{57}Co	1	80.8	2.7	3.4%	158	6	3.5%	240	8	3.0%
	2	79.0	0.3	0.4%	157	1	0.3%	234	1	0.2%
	3	80.3	0.3	0.4%	158	1	0.3%	237	1	0.2%
	4	78.4	0.3	0.4%	156	1	0.4%	233	1	0.4%
	5	79	1	0.9%	1.6E2	0.1E2	0.4%	2.3E2	0.1E2	0.3%
	6	79.0	0.2	0.3%	156	1	0.5%	231	1	0.2%
	7	81.2	0.8	1.0%	160	1	0.6%	247	7	2.7%
	$\bar{\bar{X}}$	79.7			158			236		
	S'	1.1			2			6		
	RSD'	1.4%			1.1%			2.5%		
	重复性限 r	3.2			7			11		
再现性 R	4.2			8			19			

续附表 2-3

核素	实验室号	活度 1			活度 2			活度 3		
		\bar{x}_i	S_i	RSD_i	\bar{x}_i	S_i	RSD_i	\bar{x}_i	S_i	RSD_i
^{139}Ce	1	121	3	2.2%	237	5	2.1%	357	8	2.2%
	2	120	1	0.4%	236	1	0.4%	354	1	0.2%
	3	121	1	0.4%	239	2	0.5%	358	2	0.5%
	4	119	1	0.9%	236	2	0.7%	353	2	0.6%
	5	1.2E2	0.1E2	1.2%	2.4E2	0.1E2	1.0%	3.6E2	0.1E2	0.9%
	6	119	1	0.9%	236	3	1.0%	346	4	1.1%
	7	116	2	1.3%	230	2	0.5%	353	8	2.1%
	\bar{X}	119			236			354		
	S'	2			4			5		
	RSD'	1.3%			1.5%			1.3%		
	重复性限 r	4			7			13		
	再现性 R	6			12			18		
^{113}Sn	1	209	14	6.4%	404	15	3.7%	617	27	4.4%
	2	205	1	0.4%	408	1	0.3%	607	2	0.2%
	3	210	2	0.9%	415	4	0.8%	621	3	0.5%
	4	205	2	1.0%	408	3	0.9%	608	4	0.6%
	5	2.1E2	0.1E2	0.6%	4.1E2	0.1E2	0.8%	6.1E2	0.1E2	0.7%
	6	206	1	0.5%	409	4	0.9%	602	10	1.7%
	7	210	3	1.4%	418	11	2.5%	633	15	2.3%
	\bar{X}	208			410			614		
	S'	3			5			11		
	RSD'	1.2%			1.2%			1.7%		
	重复性限 r	15			21			35		
	再现性 R	16			24			43		
^{137}Cs	1	103	5	4.5%	200	11	5.2%	301	15	4.7%
	2	100	1	0.3%	199	1	0.2%	296	1	0.2%
	3	104	1	0.3%	204	1	0.3%	306	1	0.3%
	4	101	1	0.4%	202	1	0.3%	300	2	0.7%
	5	1.0E2	0.1E2	0.8%	2.0E2	0.1E2	0.7%	3.0E2	0.1E2	0.6%
	6	101	1	0.4%	201	1	0.5%	295	2	0.5%
	7	101	2	1.1%	197	1	0.5%	306	6	1.8%
	\bar{X}	101			201			300		
	S'	2			3			5		
	RSD'	1.6%			1.1%			1.4%		
	重复性限 r	6			12			17		
	再现性 R	7			12			19		

续附表 2-3

核素	实验室号	活度 1			活度 2			活度 3		
		\bar{x}_i	S_i	RSD_i	\bar{x}_i	S_i	RSD_i	\bar{x}_i	S_i	RSD_i
^{54}Mn	1	176	5	2.9%	345	7	2.1%	523	13	2.5%
	2	172	1	0.4%	342	1	0.3%	508	2	0.2%
	3	177	1	0.3%	349	3	0.6%	525	3	0.5%
	4	174	1	0.6%	343	1	0.4%	513	1	0.2%
	5	1.7E2	0.1E2	1.1%	3.4E2	0.1E2	0.5%	5.1E2	0.1E2	0.3%
	6	175	1	0.5%	346	2	0.4%	512	6	1.1%
	7	178	2	1.0%	352	2	0.6%	543	11	2.1%
	$\bar{\bar{X}}$	175			345			519		
	S'	3			5			13		
	RSD'	1.7%			1.3%			2.4%		
	重复性限 r	7			9			19		
	再现性 R	10			15			39		
^{88}Y	1	335	9	2.7%	655	14	2.2%	991	15	1.5%
	2	344	3	0.7%	681	3	0.3%	1.02E3	0.01E3	0.3%
	3	350	3	0.8%	690	7	1.0%	1.04E3	0.01E3	0.4%
	4	348	1	0.4%	690	4	0.6%	1.03E3	0.01E3	0.8%
	5	3.5E2	0.1E2	1.0%	6.9E2	0.1E2	1.0%	1.0E3	0.1E3	1.1%
	6	349	4	1.2%	688	4	0.6%	1.01E3	0.02E3	1.1%
	7	354	4	1.0%	703	4	0.5%	1.07E3	0.02E3	1.4%
	$\bar{\bar{X}}$	347			685			1.02E3		
	S'	7			15			0.03E3		
	RSD'	1.9%			2.2%			2.7%		
	重复性限 r	13			20			0.03E3		
	再现性 R	21			46			0.09E3		
^{60}Co	1	161	6	3.4%	314	11	3.5%	479	15	3.0%
	2	157	1	0.2%	310	1	0.3%	463	1	0.1%
	3	161	1	0.3%	317	1	0.3%	476	2	0.3%
	4	159	2	1.2%	314	1	0.2%	471	2	0.4%
	5	1.6E2	0.1E2	0.8%	3.1E2	0.1E2	0.5%	4.7E2	0.1E2	0.4%
	6	157	1	0.4%	310	2	0.4%	462	2	0.5%
	7	159	2	0.9%	314	2	0.4%	486	7	1.4%
	$\bar{\bar{X}}$	159			313			472		
	S'	2			3			9		
	RSD'	1.1%			0.9%			1.8%		
	重复性限 r	7			12			17		
	再现性 R	8			14			29		

结论：7家实验室分别对统一提供的实际加标样品进行了测定和统计，其中：

^{241}Am 的加标活度分别为 278.2Bq、548.6Bq、827.9Bq，实验室内相对偏差分别为 0.1%~1.6%、0.1%~2.1%、0.1%~1.7%，实验室间相对标准偏差分别为 2.2%、2.8%、3.4%，重复性限分别为 6Bq、17Bq、21Bq，再现性限分别为 18Bq、46Bq、79Bq。

^{109}Cd 的加标活度分别为 3573Bq、7045Bq、1.063E4Bq，实验室内相对偏差分别为 0.2%~2.2%、0.1%~2.8%、0.1%~2.7%，实验室间相对标准偏差分别为 0.8%、1.4%、2.4%，重复性限分别为 1.0E2Bq、2.5E2Bq、4E2Bq，再现性限分别为 1.2E2Bq、3.5E2Bq、8E2Bq。

^{57}Co 的加标活度分别为 80.77Bq、159.3Bq、240.3Bq，实验室内相对偏差分别为 0.3%~3.3%、0.2%~3.5%、0.1%~3.0%，实验室间相对标准偏差分别为 1.4%、1.1%、2.5%，重复性限分别为 3.2Bq、7Bq、11Bq，再现性限分别为 4.2Bq、8Bq、19Bq。

^{139}Ce 的加标活度分别为 121.3Bq、239.1Bq、360.8Bq，实验室内相对偏差分别为 0.3%~2.2%、0.4%~2.1%、0.2%~2.1%，实验室间相对标准偏差分别为 1.3%、1.5%、1.3%，重复性限分别为 4Bq、7Bq、13Bq，再现性限分别为 6Bq、12Bq、18Bq。

^{113}Sn 的加标活度分别为 210.4Bq、415Bq、626.3Bq，实验室内相对偏差分别为 0.4%~6.3%、0.2%~3.7%、0.2%~4.4%，实验室间相对标准偏差分别为 1.2%、1.2%、1.7%，重复性限分别为 15Bq、21Bq、35Bq，再现性限分别为 16Bq、24Bq、43Bq。

^{137}Cs 的加标活度分别为 103.4Bq、203.8Bq、307.5Bq，实验室内相对偏差分别为 0.2%~4.5%、0.2%~5.2%、0.2%~4.7%，实验室间相对标准偏差分别为 1.6%、1.1%、1.4%，重复性限分别为 6Bq、12Bq、17Bq，再现性限分别为 7Bq、12Bq、19Bq。

^{54}Mn 的加标活度分别为 177.1Bq、349.3Bq、527.1Bq，实验室内相对偏差分别为 0.2%~2.8%、0.2%~2%、0.2%~2.4%，实验室间相对标准偏差分别为 1.7%、1.3%、2.4%，重复性限分别为 7Bq、9Bq、19Bq，再现性限分别为 10Bq、15Bq、39Bq。

^{88}Y 的加标活度分别为 345.9Bq、682.1Bq、1029Bq, 实验室内相对偏差分别为 0.4%~2.7%、0.3%~2.1%、0.3%~1.5%, 实验室间相对标准偏差分别为 1.9%、2.2%、2.7%, 重复性限分别为 13Bq、20Bq、3E1Bq, 再现性限分别为 21Bq、46Bq、9E1Bq。

^{60}Co 的加标活度分别为 161.3Bq、318.1Bq、479.9Bq, 实验室内相对偏差分别为 0.2%~3.4%、0.2%~3.4%、0.1%~2.9%, 实验室间相对标准偏差分别为 1.1%、0.9%、1.8%, 重复性限分别为 7Bq、12Bq、17Bq, 再现性限分别为 8Bq、14Bq、29Bq。

2.3 方法准确度数据汇总

7 家实验室实际加标样品准确度数据汇总见附表 2-3。

附表 2-3 实际加标样品准确度测试数据汇总表

核素	实验室号	活度 1	活度 2	活度 3
		P_i	P_i	P_i
^{241}Am	1	99.7%	98.2%	99.1%
	2	96.4%	97.0%	95.8%
	3	98.9%	99.5%	98.5%
	4	101.0%	103.0%	101.0%
	5	97.1%	98.4%	97.8%
	6	97.4%	97.5%	95.8%
	7	101.8%	104.3%	105.2%
	\bar{P}	98.9%	99.7%	99.0%
	$S_{\bar{P}}$	2.1%	2.8%	3.3%
^{109}Cd	1	98.5%	96.4%	96.7%
	2	96.8%	97.2%	95.9%
	3	99.0%	99.0%	98.1%
	4	98.4%	99.4%	98.0%
	5	98.0%	97.9%	94.1%
	6	97.6%	97.5%	95.4%
	7	98.9%	100.1%	101.1%
	\bar{P}	98.2%	98.2%	97.0%
	$S_{\bar{P}}$	0.8%	1.3%	2.3%

续附表 2-4

核素	实验室号	活度 1	活度 2	活度 3
		P_i	P_i	P_i
^{57}Co	1	100.0%	99.4%	100.0%
	2	97.8%	98.3%	97.6%
	3	99.4%	99.5%	98.8%
	4	97.1%	98.1%	96.8%
	5	97.8%	100.4%	95.7%
	6	97.8%	97.9%	96.1%
	7	100.6%	100.2%	102.6%
	\bar{P}	98.6%	99.1%	98.2%
	$S_{\bar{P}}$	1.3%	1.0%	2.5%
^{139}Ce	1	99.4%	99.2%	99.0%
	2	98.5%	98.9%	98.2%
	3	99.6%	99.9%	99.1%
	4	98.2%	98.7%	97.8%
	5	98.9%	100.4%	99.8%
	6	98.1%	98.7%	95.9%
	7	95.8%	96.0%	97.9%
	\bar{P}	98.4%	98.8%	98.2%
	$S_{\bar{P}}$	1.3%	1.4%	1.3%
^{113}Sn	1	99.1%	97.3%	98.5%
	2	97.3%	98.2%	97.0%
	3	99.6%	100.0%	99.1%
	4	97.4%	98.3%	97.2%
	5	99.8%	98.8%	97.4%
	6	97.9%	98.6%	96.1%
	7	99.9%	100.8%	101.0%
	\bar{P}	98.7%	98.9%	98.0%
	$S_{\bar{P}}$	1.2%	1.2%	1.6%
^{137}Cs	1	99.6%	98.0%	97.8%
	2	96.7%	97.8%	96.2%
	3	100.6%	100.3%	99.3%
	4	97.8%	98.9%	97.7%
	5	96.7%	98.1%	97.6%
	6	97.7%	98.6%	95.9%
	7	97.3%	96.9%	99.5%
	\bar{P}	98.1%	98.4%	97.7%
	$S_{\bar{P}}$	1.5%	1.1%	1.4%

续附表 2-4

核素	实验室号	活度 1	活度 2	活度 3
		P_i	P_i	P_i
^{54}Mn	1	99.5%	98.8%	99.2%
	2	97.3%	97.8%	96.4%
	3	99.8%	99.8%	99.5%
	4	98.0%	98.3%	97.3%
	5	96.0%	97.3%	96.8%
	6	98.8%	99.1%	97.1%
	7	100.8%	100.9%	103.1%
	\bar{P}	98.6%	98.9%	98.5%
	$S_{\bar{P}}$	1.6%	1.2%	2.4%
^{88}Y	1	96.8%	96.0%	96.3%
	2	99.4%	99.9%	99.2%
	3	101.3%	101.1%	100.8%
	4	101.0%	101.0%	99.9%
	5	101.2%	101.2%	97.2%
	6	100.9%	100.9%	98.0%
	7	102.5%	103.1%	104.1%
	\bar{P}	100.4%	100.4%	99.4%
	$S_{\bar{P}}$	1.8%	2.2%	2.6%
^{60}Co	1	99.8%	98.7%	99.8%
	2	97.1%	97.5%	96.6%
	3	99.6%	99.6%	99.1%
	4	98.3%	98.8%	98.0%
	5	99.2%	97.5%	97.9%
	6	97.3%	97.5%	96.3%
	7	98.8%	98.6%	101.2%
	\bar{P}	98.6%	98.3%	98.4%
	$S_{\bar{P}}$	1.1%	0.8%	1.7%

结论：7 家实验室分别对统一提供的实际加标样品进行了测定和统计，其中：

^{241}Am 的加标活度分别为 278.2Bq、548.6Bq、827.9Bq，加标回收率分别为 96.4%~101.8%、97.0%~104.3%、95.8%~105.2%，加标回收率最终值分别为 98.9%±4.2%、99.7%±5.6%、99.0%±6.6%。

^{109}Cd 的加标活度分别为 3573Bq、7045Bq、1.063E4Bq，加标回收率分别为 96.8%~99.0%、96.4%~100.1%、94.1%~101.1%，加标回收率最终值分别为 98.2%±1.6%、98.2%±2.6%、97.0%±4.6%。

^{57}Co 的加标活度分别为 80.77Bq、159.3Bq、240.3Bq，加标回收率分别为 97.1%~100.6%、97.9%~100.4%、95.7%~102.6%，加标回收率最终值分别为 98.6%±2.6%、99.1%±2.0%、98.2%±5.0%。

^{139}Ce 的加标活度分别为 121.3Bq、239.1Bq、360.8Bq，加标回收率分别为 95.8%~99.6%、96%~100.4%、95.9%~99.8%，加标回收率最终值分别为 98.4%±2.6%、98.8%±2.8%、98.2%±2.6%。

^{113}Sn 的加标活度分别为 210.4Bq、415Bq、626.3Bq，加标回收率分别为 97.3%~99.9%、97.3%~100.8%、96.1%~101.0%，加标回收率最终值分别为 98.7%±2.4%、98.9%±2.4%、98.0%±3.2%。

^{137}Cs 的加标活度分别为 103.4Bq、203.8Bq、307.5Bq，加标回收率分别为 96.7%~100.6%、96.9%~100.3%、95.9%~99.5%，加标回收率最终值分别为 98.1%±3.0%、98.4%±2.2%、97.7%±2.8%。

^{54}Mn 的加标活度分别为 177.1Bq、349.3Bq、527.1Bq，加标回收率分别为 96.0%~100.8%、97.3%~100.9%、96.4%~103.1%，加标回收率最终值分别为 98.6%±3.2%、98.9%±2.4%、98.5%±4.8%。

^{88}Y 的加标活度分别为 345.9Bq、682.1Bq、1029Bq，加标回收率分别为 96.8%~102.5%、96.0%~103.1%、96.3%~104.1%，加标回收率最终值分别为 100.4%±3.6%、100.4%±4.4%、99.4%±5.2%。

^{60}Co 的加标活度分别为 161.3Bq、318.1Bq、479.9Bq，加标回收率分别为 97.1%~99.8%、97.5%~99.6%、96.3%~101.2%，加标回收率最终值分别为 98.6%±2.2%、98.3%±1.6%、98.4%±3.4%。

3 方法验证结论

3.1 方法探测下限

4家实验室的验证实验表明,当取样量约为10000m³时,各核素的探测下限范围分别为:⁷Be, 18.1~46.2 μBq/m³; ⁴⁰K, 20.4~79.4 μBq/m³; ⁵⁴Mn, 1.9~3.5 μBq/m³; ⁵⁸Co, 2.2~3.9 μBq/m³; ⁶⁰Co, 2.3~4.1 μBq/m³; ⁹⁵Zr, 3.5~8.5 μBq/m³; ¹³¹I, 1.9~29 μBq/m³; ¹³⁴Cs, 1.9~3.4 μBq/m³; ¹³⁷Cs, 2.1~3.7 μBq/m³; ¹⁴⁰Ba, 8.2~41 μBq/m³; ¹⁴⁴Ce, 8.8~34.7 μBq/m³; ²¹⁰Pb, 22.8~58.8 μBq/m³; ²²⁸Ac, 8.4~18.4 μBq/m³; ²³⁴Th, 14.8~61.0 μBq/m³,除个别样品由于采样结束至测量开始时间间隔远大于本标准草案的规定,受衰变校正的影响,样品中¹³¹I的探测下限偏高外,其余样品中各核素的探测下限均小于标准规定的最高探测下限。

验证实验、国控网监测主要分布区间、本标准最终确定的方法探测下限对比见附表3-1。

附表3-1 探测下限对比

核素	探测下限 (μBq/m ³)		
	验证实验	国控网主要分布区间	本标准规定
⁷ Be	18.1~46.2	/	50
⁴⁰ K	20.4~79.4	32~92	100
⁵⁴ Mn	1.9~3.5	1.5~5.8	5
⁵⁸ Co	2.2~3.9	1.5~6.1	5
⁶⁰ Co	2.3~4.1	1.6~7.0	5
⁹⁵ Zr	3.5~8.5	2.7~8.5	10
¹³¹ I	1.9~29	1.7~6.4	20
¹³⁴ Cs	1.9~3.4	1.6~5.2	5
¹³⁷ Cs	2.1~3.7	1.6~5.2	5
¹⁴⁰ Ba	8.2~41	/	50
¹⁴⁴ Ce	8.8~34.7	6.0~32	50
²¹⁰ Pb	22.8~58.8	/	100
²²⁸ Ac	8.4~18.4	6.9~21	20
²³⁴ Th	14.8~61.0	22~176	100

3.2 方法精密度

7家实验室的验证实验表明,低活度、中活度、高活度的混合 γ 放射性核素加标样品(含 ^{241}Am 、 ^{57}Co 、 ^{139}Ce 、 ^{113}Sn 、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn 、 ^{88}Y 、 ^{65}Zn 、 ^{60}Co 共9种核素),实验室内相对偏差分别为0.1%~6.3%、0.1%~5.2%、0.1%~4.7%,实验室间相对标准偏差分别为0.8%~2.2%、0.9%~2.8%、1.3%~3.4%,重复性限分别为3.2Bq~1.0E2Bq、7Bq~2.5E2Bq、11Bq~4E2Bq,再现性限分别为4.2Bq~1.2E2Bq、8Bq~3.5E2Bq、18Bq~8E2Bq。本标准最终确定的方法精密度汇总表见附表3-2。

附表 3-2 方法的精密度汇总表

核素	加标活度 (Bq)	实验室内相对 标准偏差 (%)	实验室间相对 标准偏差 (%)	重复性限 (Bq)	再现性限 (Bq)
Am-241	278.2	0.1~1.6	2.2	6	18
	548.6	0.1~2.1	2.8	17	46
	827.9	0.1~1.7	3.4	21	79
Cd-109	3573	0.2~2.2	0.8	1.0E2	1.2E2
	7045	0.1~2.8	1.4	2.5E2	3.5E2
	1.063E4	0.1~2.7	2.4	4E2	8E2
Co-57	80.77	0.3~3.3	1.4	3.2	4.2
	159.3	0.2~3.5	1.1	7	8
	240.3	0.1~3.0	2.5	11	19
Ce-139	121.3	0.3~2.2	1.3	4	6
	239.1	0.4~2.1	1.5	7	12
	360.8	0.2~2.1	1.3	13	18
Sn-113	210.4	0.4~6.3	1.2	15	16
	415.0	0.2~3.7	1.2	21	24
	626.3	0.2~4.4	1.7	35	43
Cs-137	103.4	0.2~4.5	1.6	6	7
	203.8	0.2~5.2	1.1	12	12
	307.5	0.2~4.7	1.4	17	19
Mn-54	177.1	0.2~2.8	1.7	7	10
	349.3	0.2~2.0	1.3	9	15
	527.1	0.2~2.4	2.4	19	39
Y-88	345.9	0.4~2.7	1.9	13	21
	682.1	0.3~2.1	2.2	20	46
	1029	0.3~1.5	2.7	3E1	9E1
Co-60	161.3	0.2~3.4	1.1	7	8
	318.1	0.2~3.4	0.9	12	14
	479.9	0.1~2.9	1.8	17	29

3.3 方法准确度

7家实验室的验证实验表明,低活度、中活度、高活度的混合 γ 放射性核素加标样品(含 ^{241}Am 、 ^{57}Co 、 ^{139}Ce 、 ^{113}Sn 、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn 、 ^{88}Y 、 ^{65}Zn 、 ^{60}Co 共9种核素),加标回收率分别为95.8%~102.5%、96.0%~104.3%、94.1%~105.2%,加标回收率的均值分

别为 98.1%~100.4%、98.2%~100.4%、97.0%~99.4%，加标回收率的标准偏差分别为 0.8%~2.1%、0.8%~2.8%、1.3%~3.3%。本标准最终确定的方法准确度汇总表见附表 3-3。

附表 3-3 方法的准确度汇总表

核素	加标活度 (Bq)	加标回收率 (%)	加标回收率最终值 $\bar{P} \pm 2S_P$ (%)
Am-241	278.2	98.9	98.9±4.2
	548.6	99.7	99.7±5.6
	827.9	99.0	99.0±6.6
Cd-109	3573	98.2	98.2±1.6
	7045	98.2	98.2±2.6
	1.063E4	97.0	97.0±4.6
Co-57	80.77	98.6	98.6±2.6
	159.3	99.1	99.1±2.0
	240.3	98.2	98.2±5.0
Ce-139	121.3	98.4	98.4±2.6
	239.1	98.8	98.8±2.8
	360.8	98.2	98.2±2.6
Sn-113	210.4	98.7	98.7±2.4
	415.0	98.9	98.9±2.4
	626.3	98.0	98.0±3.2
Cs-137	103.4	98.1	98.1±3.0
	203.8	98.4	98.4±2.2
	307.5	97.7	97.7±2.8
Mn-54	177.1	98.6	98.6±3.2
	349.3	98.9	98.9±2.4
	527.1	98.5	98.5±4.8
Y-88	345.9	100.4	100.4±3.6
	682.1	100.4	100.4±4.4
	1029	99.4	99.4±5.2
Co-60	161.3	98.6	98.6±2.2
	318.1	98.3	98.3±1.6
	479.9	98.4	98.4±3.4

3.4 整体结论

方法的探测下限、精密度、准确度等各项指标满足方法特性指标要求。