



Beispiele zur Berechnung von Erkennungs- und Nachweisgrenze gemäß DIN ISO 11929

Bearbeiter: I. Fesenbeck, Karlsruher Institut für Technologie, Karlsruhe
Chr. Wilhelm, Karlsruher Institut für Technologie, Karlsruhe
A. Zieger, Karlsruher Institut für Technologie, Karlsruhe

Inhaltsverzeichnis	Seite
1 Einleitung	3
2 Grundlagen	3
2.1 Aktivität	3
2.2 Messunsicherheit der Aktivität	3
2.3 Charakteristische Grenzen	4
3 Beispiele aus der Umweltüberwachung	4
3.1 Bestimmung der Aktivitätskonzentration von H-3 in Wasser durch Messung der Nettozählrate	4
3.1.1 Grundlagen der Methode	4
3.1.2 Größen und Formelzeichen	5
3.1.3 Berechnung der Aktivitätskonzentration	5
3.1.4 Berechnung der Messunsicherheit	5
3.1.5 Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)	5
3.1.6 Berechnungsbeispiel	6
3.2 Alpha-Beta-Brutto-Messung	7
3.2.1 Grundlagen der Methode	7
3.2.2 Größen und Formelzeichen	7
3.2.3 Berechnung der Aktivitätskonzentration	9
3.2.4 Berechnung der Messunsicherheit	9
3.2.5 Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)	10
3.2.6 Berechnungsbeispiel	11
3.3 Messung mittels Gammaskopmetrie	13
3.3.1 Grundlagen der Methode	13
3.3.2 Größen und Formelzeichen	13
3.3.3 Berechnung der spezifischen Aktivität	14
3.3.3.1 Bestimmung der Netto-Peakfläche	15
3.3.3.2 Berücksichtigung eines Nulleffekt-Peaks	16
3.3.4 Berechnung der Messunsicherheit	16
3.3.5 Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)	17
3.3.6 Berechnungsbeispiel	17



3.4	Überwachung der Sr-90 - Aktivität von Kuhmilch	21
3.4.1	Grundlagen der Methode	21
3.4.2	Größen und Formelzeichen	21
3.4.3	Berechnung der Aktivität	21
3.4.4	Berechnung der Messunsicherheit	22
3.4.5	Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)	22
3.4.6	Berechnungsbeispiel	23
3.5	Überwachung der Plutoniumaktivität in Boden	25
3.5.1	Grundlagen der Methode	25
3.5.2	Größen und Formelzeichen	25
3.5.3	Berechnung der Aktivität	26
3.5.4	Berechnung der Messunsicherheit	26
3.5.5	Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)	27
3.5.6	Berechnungsbeispiel	27
4	Literatur	30



1 Einleitung

Die Einführung der neuen DIN ISO 11929 „Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen (ISO 11929:2010)“ [1] macht es erforderlich, in allen Methoden zur Bestimmung von Aktivität und Dosis die Berechnungsverfahren der Erkennungs- und Nachweisgrenzen auf diese neue Norm umzustellen. In der Loseblattsammlung des AKU [2] sind davon ca. 30 Lose Blätter betroffen, deren entsprechende Unterkapitel umzuarbeiten sind. In diesem Blatt soll, neben wenigen Grundlagen zur Messunsicherheit und zur Berechnung der charakteristischen Grenzen, an ausgewählten Beispielen der Loseblattsammlung die Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen nach DIN ISO 11929 dargestellt werden. Eine weitere gute Quelle zur Einführung in die komplexe Thematik und praktische Beispiele zur Umsetzung der DIN ISO 11929 finden Sie in der Diplomarbeit "Charakteristische Grenzen nach DIN ISO 11929" von Linda Peters [3].

2 Grundlagen

2.1 Aktivität

Die Aktivität errechnet sich, ganz vereinfacht und verallgemeinert, durch Multiplikation der Netto-Zählrate mit dem erweiterten Kalibrierfaktor:

$$A = r_n \cdot w \quad (1)$$

Typische Größen, die in den erweiterten Kalibrierfaktor eingehen, sind der Zählwirkungsgrad, der in anderer Literatur auch Nachweiswahrscheinlichkeit genannt wird, die Emissionswahrscheinlichkeit, die Probengröße, entweder als Masse oder Volumen, und Korrekturfaktoren. Letztere können erforderlich sein zur Korrektur des radioaktiven Zerfalls oder zur Korrektur des Wirkungsgrads, wie beispielsweise Selbstabsorptionskorrektur oder Kaskadenkorrektur (Koinzidenz-Summationskorrektur) in der Gammaskopimetrie.

$$w = \frac{1}{\varepsilon \cdot p_E \cdot v \cdot K} \quad (2)$$

Der erweiterte Kalibrierfaktor in Gleichung (2) beinhaltet zum Beispiel den Zählwirkungsgrad ε , die Emissionswahrscheinlichkeit p_E , als Probengröße das Volumen v und einen Korrekturfaktor K . Dieser könnte die Zerfallskorrektur oder die Selbstabsorptionskorrektur sein.

2.2 Messunsicherheit der Aktivität

Aus den Unsicherheiten der Nettozählrate und des erweiterten Kalibrierfaktors ergibt sich die Standardmessunsicherheit der Aktivität zu:

$$u(A) = \sqrt{r_n^2 \cdot u^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n)} = \sqrt{A^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n)} \quad (3)$$

Da das Verfahren zur Berechnung der Unsicherheit der Nettozählrate vom Messverfahren abhängt, wird es in den Beispielen in Kapitel 3 jeweils individuell beschrieben.

Die Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w setzt sich aus den Unsicherheiten all seiner Eingangsgrößen wie folgt zusammen:

$$u(w) = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial w}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i)} \quad (4)$$



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 5.5

Seite: 4 von 30

Stand: April 2013

Die Unsicherheiten der Zerfallskonstanten und der Zeitdifferenzen, die in die Zerfallskorrektur eingehen, können in der Regel vernachlässigt werden. Mit dieser Vereinfachung bleiben meist nur noch multiplikative Unsicherheitsbeiträge zu $u(w)$ übrig. Bei reiner Multiplikation oder Division lässt sich die relative Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w , $u_{\text{rel}}(w)$, wie folgt berechnen:

$$u_{\text{rel}}(w) = \sqrt{\sum_{i=1}^n u_{\text{rel}}^2(x_i)} \quad (5)$$

2.3 Charakteristische Grenzen

Aus der Standardmessunsicherheit der Aktivität wird die Gleichung für die Erkennungsgrenze A^* abgeleitet, indem in Gleichung (3) $A = 0$ gesetzt wird:

$$A^* = k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{w^2 \cdot u^2(r_n)} = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot u(r_n) \quad (6)$$

Bei der Berechnung der Unsicherheit der Nettozählrate $u(r_n)$ wird die Bruttozählrate r_b gleich der Nulleffektzählrate r_0 gesetzt, da aus $A = 0$ folgt, dass auch $r_n = 0$ sein muss.

Die Nachweisgrenze $A^\#$ kann aus der Erkennungsgrenze und der Standardmessunsicherheit der Aktivität bei $A = A^\#$ folgendermaßen berechnet werden:

$$A^\# = A^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{A^{\#2} \cdot u_{\text{rel}}^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n)} \quad (7)$$

Zur Berechnung der Unsicherheit der Nettozählrate $u(r_n)$ wird hier an Stelle der Bruttozählrate r_b ein Term eingesetzt, der sich ergibt, indem die Gleichung zur Aktivitätsberechnung umgestellt und nach r_b aufgelöst wird. In diesem Term wird wiederum $A = A^\#$ gesetzt. Die Lösung dieser impliziten Gleichung erhält man durch Iteration mit dem Startwert $A^\# = 2 \cdot A^*$.

In manchen Fällen und unter bestimmten Voraussetzungen lässt sich die implizite Gleichung in eine quadratische Gleichung umwandeln und lösen.

Dies alles wird in den Beispielen in Kapitel 3 noch detaillierter und individuell dargestellt.

Bemerkenswert ist, dass die Erkennungsgrenze von der Zählrate des Nulleffekts abhängt, die Nachweisgrenze hingegen zusätzlich auch von der Unsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w .

3 Beispiele aus der Umweltüberwachung

3.1 Bestimmung der Aktivitätskonzentration von H-3 in Wasser durch Messung der Nettozählrate

3.1.1 Grundlagen der Methode

Bei der Flüssigszintillationsspektrometrie wird die zu messende Probe mit der flüssigen Szintillatormischung (auch Cocktail) genannt in einem Messfläschchen gemischt oder aufgelöst. Die Strahlungsenergie der Betateilchen wird auf die Szintillatormischung übertragen, was zu Lichtemission führt. Im Messgerät wird die Intensität der Lichtemission gemessen, und über eine Spektroskopielektronik kann somit ein Energiespektrum der Betastrahlung aufgenommen werden.

Die Bestimmung der Aktivität der Probe erfolgt dann über die in einem eingestellten Energiebereich des Spektrums registrierte Impulsrate, welche unter Berücksichtigung des Nulleffekts mit dem Wirkungsgrad zur Aktivität verrechnet wird.

Die im Idealfall destillierte Wasserprobe wird direkt mit einem flüssigen Szintillator vermischt und die Zählrate im eingestellten Energiebereich für Tritium mit einem LSC-Messgerät ermittelt. Näheres zur Bestimmung von Tritium in Wasser ist im Losen Blatt 3.1.12.2 „Überwachung der Tritiumaktivität in Wasser“ [2] zu finden.

3.1.2 Größen und Formelzeichen

In den nachfolgenden Gleichungen werden folgende Formelzeichen für die Größen verwendet:

c_A	Aktivitätskonzentration der Probe in $\text{Bq}\cdot\text{mL}^{-1}$
r_g	Gesamtzählrate der Probe in s^{-1}
r_0	Zählrate einer Nullprobe in s^{-1}
w	erweiterter Kalibrierfaktor in mL^{-1}
ε	Zählwirkungsgrad bei der Messung
v	Volumen der Messprobe in mL
t_m	Messzeit der Probe in s
t_0	Messzeit der Nullprobe in s
$k_{1-\alpha}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 1. Art
$k_{1-\beta}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 2. Art
$u(c_A)$	Messunsicherheit der Aktivitätskonzentration der Probe in $\text{Bq}\cdot\text{mL}^{-1}$
$u_{\text{rel}}(w)$	relative Unsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors
c_A^*	Erkennungsgrenze der Aktivitätskonzentration der Probe in $\text{Bq}\cdot\text{mL}^{-1}$
$c_A^\#$	Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration der Probe in $\text{Bq}\cdot\text{mL}^{-1}$

3.1.3 Berechnung der Aktivitätskonzentration

Die Aktivitätskonzentration des Tritiums wird aus der Differenz der Zählrate der Probe r_g und der Zählrate einer Nullprobe r_0 ermittelt. Diese Differenz wird dann durch den bekannten Zählwirkungsgrad und das in den Szintillator eingebrachte Probenvolumen geteilt.

$$c_A = w \cdot (r_g - r_0) \quad (8)$$

$$w = \frac{1}{\varepsilon \cdot v} \quad (9)$$

3.1.4 Berechnung der Messunsicherheit

Die Messunsicherheit der Aktivitätskonzentration ergibt sich aus der Unsicherheit der Zählratendifferenz und der Unsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w zu:

$$u(c_A) = \sqrt{(r_g - r_0)^2 \cdot u^2(w) + w^2 \cdot \left(\frac{r_g}{t_m} + \frac{r_0}{t_0} \right)} \quad (10)$$

3.1.5 Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)

Unter Anwendung der DIN ISO 11929 [1] ergibt sich die Erkennungsgrenze zu:

$$c_A^* = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot \sqrt{r_0 \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0} \right)} \quad (11)$$

und die Nachweisgrenze zu:

$$c_A^\# = c_A^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{c_A^{\#2} \cdot u_{\text{rel}}^2(w) + w^2 \cdot \left[\frac{c_A^\#}{t_m \cdot w} + r_0 \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0} \right) \right]} \quad (12)$$

3.1.6 Berechnungsbeispiel

Eingangsparameter:

Gesamtzählrate	$r_g = 0,21 \text{ s}^{-1}$
Zählrate Nullprobe	$r_0 = 0,11 \text{ s}^{-1}$
Zählwirkungsgrad bei der Messung	$\varepsilon = 0,44 \text{ oder } 44 \%$
Unsicherheit des Zählwirkungsgrads	$u(\varepsilon) = 0,044$
Volumen der Messprobe	$v = 2 \text{ mL}$
Unsicherheit des Volumens	$u(v) = 0,1 \text{ mL}$
Messzeit der Probe	$t_m = 600 \text{ s}$
Messzeit der Nullprobe	$t_0 = 3600 \text{ s}$
Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 1. Art	$k_{1-\alpha} = 1,645$
Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 2. Art	$k_{1-\beta} = 1,645$

Der erweiterte Kalibrierfaktor ergibt sich dann zu:

$$w = \frac{1}{0,44 \cdot 0,002} \text{ L}^{-1} = 1136,36 \text{ L}^{-1}$$

und die relative Unsicherheit von w zu:

$$u_{\text{rel}}(w) = \sqrt{\left(\frac{0,044}{0,44}\right)^2 + \left(\frac{0,1}{2}\right)^2} = 0,112$$

Die Aktivitätskonzentration ergibt sich zu:

$$c_A = 1136,36 \cdot (0,21 - 0,11) \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 113,636 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

und die Unsicherheit von c_A zu:

$$u(c_A) = \sqrt{(0,21 - 0,11)^2 \cdot (0,112 \cdot 1136,36)^2 + 1136,36^2 \cdot \left(\frac{0,21}{600} + \frac{0,11}{3600}\right)} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 25,562 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Die Erkennungsgrenze ergibt sich zu:

$$c_A^* = 1,645 \cdot 1136,36 \cdot \sqrt{0,11 \cdot \left(\frac{1}{3600} + \frac{1}{600}\right)} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 27,339 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Nachweisgrenze errechnet sich durch Iteration mit dem Startwert $c_A^\# = 2 \cdot c_A^*$

$$c_A^\# = 27,339 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} + 1,645 \cdot \sqrt{c_A^{\#2} \cdot 0,112^2 + (1136,36)^2 \cdot \left[\frac{c_A^\#}{600 \cdot 1136,36} + 0,11 \cdot \left(\frac{1}{600} + \frac{1}{3600}\right) \right]} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$



Tabelle 1: Iteration für die Berechnung der Nachweisgrenze.

	Nachweisgrenze	Differenz
Startwert	54,67733 Bq·L ⁻¹	-
1. Iteration	60,93556 Bq·L ⁻¹	6,25823 Bq·L ⁻¹
2. Iteration	61,76683 Bq·L ⁻¹	0,83127 Bq·L ⁻¹
3. Iteration	61,87863 Bq·L ⁻¹	0,11180 Bq·L ⁻¹
4. Iteration	61,89369 Bq·L ⁻¹	0,01506 Bq·L ⁻¹

Bereits nach dem 4. Iterationsschritt erhält man eine relativ kleine Differenz in der Nachweisgrenze von 0,00024 oder 0,024 %. Somit ergibt sich die Nachweisgrenze zu 61,9 Bq·L⁻¹.

3.2 Alpha-Beta-Brutto-Messung

3.2.1 Grundlagen der Methode

Zur Bestimmung der Alpha-Beta-Gesamt-Aktivitätskonzentration einer Wasserprobe wird diese oder ein Teil der Probe auf einer Messschale eingedampft und mit einem einzelnen, mit Zählgas gespülten Proportionalzählrohr gemessen. Eine Probenvorbereitung ist nur für die Messung von flüchtigen radioaktiven Stoffen und gegebenenfalls für Proben notwendig, deren pH-Wert im sauren Bereich liegt.

Ein Teil der aus der Probe emittierten Alpha- und Beta-Teilchen gelangt in den Detektor und ionisiert das Zählgas. Die Primäronisation wird durch einen Gasverstärkungsprozess vervielfacht und als Stromimpuls gemessen. Der Gasverstärkungsfaktor ist abhängig von der angelegten Zählrohrspannung und proportional zu der Energie des einfallenden Teilchens. Da Alpha-Teilchen eine höhere Energie als Beta-Teilchen besitzen, kann mit dem Proportionalzähler durch Anlegen unterschiedlicher Arbeitsspannungen nach der Teilchenart unterschieden werden.

Bei Vorliegen eines Alpha-Beta-Gemisches werden bei der Beta-Messung ebenfalls Alpha-Strahler registriert. Um diese herausrechnen zu können, muss ein Korrektionsfaktor bestimmt werden. Dazu wird das Alpha-Präparat, mit welchem der Wirkungsgrad für die Alpha-Messung bestimmt wird, ebenfalls bei der am Zählrohr angelegten Beta-Arbeitsspannung gemessen. Der Faktor zwischen der bei der Beta-Spannung ermittelten Impulsrate und der bei der Alpha-Spannung ermittelten Impulsrate wird zur Korrektur der bei der Messung der Beta-Aktivität ermittelten Zählrate verwendet.

Die Intensität der Strahlung nimmt exponentiell mit der Schichtdicke der Probe ab. Alpha-Strahlung wird stärker in der Probe absorbiert als Beta-Strahlung, da der lineare Energietransfer (LET) der Alpha-Strahlung höher ist. Durch die Bestimmung von Selbstabsorptionsfunktionen kann die Absorption in der Probe korrigiert werden. Wird immer die gleiche Menge vom gleichen Medium auf die Messschale aufgebracht, kann je ein fester Selbstabsorptionsfaktor für beide Strahlenarten verwendet werden.

3.2.2 Größen und Formelzeichen

In den nachfolgenden Gleichungen werden folgende Formelzeichen für die Größen verwendet:

$c_{G\alpha}$	Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration der Probe in Bq·L ⁻¹
$c_{G\beta}$	Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration der Probe in Bq·L ⁻¹
$c_{G\alpha}^*$	Erkennungsgrenze der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration in Bq·L ⁻¹
$c_{G\beta}^*$	Erkennungsgrenze der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration in Bq·L ⁻¹
$c_{G\alpha}^\#$	Nachweisgrenze der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration in Bq·L ⁻¹
$c_{G\beta}^\#$	Nachweisgrenze der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration in Bq·L ⁻¹
ε_α	Zählwirkungsgrad der Messung der Alpha-Aktivität, gemessen bei HV1



ε_{β}	Zählwirkungsgrad der Messung der Beta-Aktivität, gemessen bei HV2
HV1	Arbeitsspannung zur Messung der Alpha-Aktivität
HV2	Arbeitsspannung zur Messung der Beta-Aktivität
K_{α}	Korrektionsfaktor für die Alpha-Zählrate, die bei HV2 gemessen wird
$k_{1-\alpha}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 1. Art
$k_{1-\beta}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 2. Art
m	Menge der Probe in L
r_{α}	Alpha-Bruttozählrate, gemessen bei HV1 in s^{-1}
$r_{0,\alpha} = r_{0,HV1}$	Nulleffekt-Zählrate, gemessen bei HV1 in s^{-1}
r_{β}	Beta-Bruttozählrate, gemessen bei HV2 in s^{-1}
$r_{0,\beta} = r_{0,HV2}$	Nulleffekt-Zählrate, gemessen bei HV2 in s^{-1}
$r_{p_{\alpha}} = r_{p_{\alpha},HV1}$	Bruttozählrate des Alpha-Kalibrierpräparates, gemessen bei HV1 in s^{-1}
$r_{p_{\alpha},HV2}$	Bruttozählrate des Alpha-Kalibrierpräparates, gemessen bei HV2 in s^{-1}
$r_{p_{\beta}}$	Bruttozählrate des Beta-Kalibrierpräparates, gemessen bei HV2 in s^{-1}
S_{α}	Selbstabsorptionsfaktor für Alpha-Strahlung
S_{β}	Selbstabsorptionsfaktor für Beta-Strahlung
t_{α}	Messzeit der Probe bei HV1 in s
t_{β}	Messzeit der Probe bei HV2 in s
t_0	Messzeit des Nulleffekts, hier als gleich bei HV1 und HV2 vorausgesetzt, in s
$t_{p_{\alpha},HV1}$	Messzeit des Alpha-Kalibrierpräparates bei HV1 in s
$t_{p_{\alpha},HV2}$	Messzeit des Alpha-Kalibrierpräparates bei HV2 in s
$t_{p_{\beta}}$	Messzeit des Beta-Kalibrierpräparates in s
$u(c_{G\alpha})$	Standardunsicherheit der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration in $Bq \cdot L^{-1}$
$u(c_{G\beta})$	Standardunsicherheit der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration in $Bq \cdot L^{-1}$
$u_{rel}(c_{G\alpha})$	Relative Messunsicherheit der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration der Probe
$u_{rel}(c_{G\beta})$	Relative Messunsicherheit der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration der Probe
$u_{rel}(\varepsilon_{\alpha})$	Relative Unsicherheit des Zählwirkungsgrades für Alpha-Strahlung, entspricht der Unsicherheit des Kalibrierstandards laut Zertifikat
$u_{rel}(\varepsilon_{\beta})$	Relative Unsicherheit des Zählwirkungsgrades für Beta-Strahlung, entspricht der Unsicherheit des Kalibrierstandards laut Zertifikat
$u(K_{\alpha})$	Unsicherheit des Alpha-Korrektionsfaktors
$u_{rel}(m)$	Relative Unsicherheit der Probenmenge, enthält auch Unsicherheiten durch Probenvorbereitung
$u_{rel}(S_{\alpha})$	Relative Unsicherheit des Selbstabsorptionsfaktors für Alpha-Strahlung
$u_{rel}(S_{\beta})$	Relative Unsicherheit des Selbstabsorptionsfaktors für Beta-Strahlung

3.2.3 Berechnung der Aktivitätskonzentration

Zur Berechnung der Alpha- und Beta-Gesamt-Aktivitätskonzentration der Probe werden zuerst die Nettozählraten r_n ermittelt. Diese werden anschließend durch die Probenmenge sowie den jeweiligen Wirkungsgrad und Selbstabsorptionsfaktor für Alpha- bzw. Betastrahlung dividiert.

Für die Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration gilt:

$$c_{G\alpha} = \frac{r_\alpha - r_{0,\alpha}}{\varepsilon_\alpha \cdot m \cdot S_\alpha} = r_{n,\alpha} \cdot w \quad (13)$$

mit dem erweiterten Kalibrierfaktor w :

$$w = \frac{1}{\varepsilon_\alpha \cdot m \cdot S_\alpha} \quad (14)$$

Die Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration wird berechnet durch:

$$c_{G\beta} = \frac{r_\beta - r_{0,\beta} - (K_\alpha \cdot (r_\alpha - r_{0,\alpha}))}{\varepsilon_\beta \cdot m \cdot S_\beta} = r_{n,\beta} \cdot w \quad (15)$$

mit dem erweiterten Kalibrierfaktor w :

$$w = \frac{1}{\varepsilon_\beta \cdot m \cdot S_\beta} \quad (16)$$

und mit dem durch Messungen mit einem Alpha-Kalibrierpräparat ermittelten Korrektionsfaktor K_α :

$$K_\alpha = \frac{r_{P\alpha,HV2} - r_{0,HV2}}{r_{P\alpha,HV1} - r_{0,HV1}} \quad (17)$$

3.2.4 Berechnung der Messunsicherheit

Die Standardmessunsicherheit der Gesamt-Aktivitätskonzentration errechnet sich aus der zählstatistischen Unsicherheit der Nettozählrate $u(r_n)$ und der Unsicherheit des Kalibrierfaktors $u(w)$ nach der allgemeinen Gleichung:

$$u(c_G) = \sqrt{r_n^2 \cdot u^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n)} = \sqrt{c_G^2 \cdot u_{rel}^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_n)} \quad (18)$$

Die zählstatistische Messunsicherheit der Alpha-Messung errechnet sich nach der einfachen Gleichung

$$u(r_{n,\alpha}) = \sqrt{\frac{r_\alpha}{t_\alpha} + \frac{r_{0,\alpha}}{t_0}} \quad (19)$$

während die Berechnung der zählstatistischen Messunsicherheit der Beta-Messung durch die Korrektur des Alpha-Beitrags etwas komplexer wird:

$$u(r_{n,\beta}) = \sqrt{\frac{r_{\beta}}{t_{\beta}} + \frac{r_{0,\beta}}{t_0} + \left(\frac{r_{\alpha}}{t_{\alpha}} + \frac{r_{0,\alpha}}{t_0}\right) \cdot K_{\alpha}^2 + u^2(K_{\alpha}) \cdot (r_{\alpha} - r_{0,\alpha})^2} \quad (20)$$

mit

$$u(K_{\alpha}) = \frac{1}{r_{p_{\alpha},HV1} - r_{0,HV1}} \cdot \sqrt{\frac{r_{p_{\alpha},HV2}}{t_{p_{\alpha},HV2}} + \frac{r_{0,HV2}}{t_0} + \left(\frac{r_{p_{\alpha},HV1}}{t_{p_{\alpha},HV1}} + \frac{r_{0,HV1}}{t_0}\right) \cdot K_{\alpha}^2} \quad (21)$$

Die Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w setzt sich zusammen aus den Unsicherheiten der Kalibrierung (des Zählwirkungsgrads), des Selbstabsorptionsfaktors und den Unsicherheiten bei der Herstellung der Messproben.

Die Unsicherheit des Zählwirkungsgrads $u(\varepsilon)$ ergibt sich aus der Unsicherheit der Aktivität des Flächenpräparats gemäß Kalibrierschein. Die Unsicherheit aus der Messung des Zählwirkungsgrads ist bei der hohen Aktivität des Präparates vernachlässigbar klein.

Bei der Unsicherheit des Selbstabsorptionsfaktors $u(S)$ müssen alle Unsicherheitsbeiträge aus der Ermittlung der Selbstabsorptionskurve berücksichtigt werden.

Die Unsicherheit bei der Herstellung der Probe richtet sich nach den Hilfsmitteln, die benutzt werden. Im einfachsten Fall ist es die Unsicherheit der Menge des Wassers $u(m)$, die eingedampft und durch Wägung oder Abmessen bestimmt wird.

$$u_{rel}(w) = \sqrt{u_{rel}^2(\varepsilon) + u_{rel}^2(S) + u_{rel}^2(m)} \quad (22)$$

3.2.5 Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)

Die Erkennungs- und die Nachweisgrenze werden nach DIN ISO 11929 [1] berechnet.

Die Erkennungsgrenze der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration $c_{G\alpha}^*$ berechnet sich durch:

$$c_{G\alpha}^* = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot \sqrt{\frac{r_{0,\alpha}}{t_{\alpha}} + \frac{r_{0,\alpha}}{t_0}} \quad (23)$$

und die der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration $c_{G\beta}^*$ mittels:

$$c_{G\beta}^* = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot \sqrt{\frac{(r_{\alpha} - r_{0,\alpha}) \cdot K_{\alpha}}{t_{\beta}} + \frac{r_{0,\beta}}{t_{\beta}} + \frac{r_{0,\beta}}{t_0} + \left(\frac{r_{\alpha}}{t_{\alpha}} + \frac{r_{0,\alpha}}{t_0}\right) \cdot K_{\alpha}^2 + u^2(K_{\alpha}) \cdot (r_{\alpha} - r_{0,\alpha})^2} \quad (24)$$

Die Nachweisgrenze der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration $c_{G\alpha}^{\#}$ wird aus der Erkennungsgrenze $c_{G\alpha}^*$ wie folgt berechnet:

$$c_{G\alpha}^{\#} = c_{G\alpha}^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{w^2 \cdot \left(\frac{c_{G\alpha}^{\#}}{t_{\alpha} \cdot w} + \frac{r_{0,\alpha}}{t_{\alpha}} + \frac{r_{0,\alpha}}{t_0}\right) + c_{G\alpha}^{\# 2} \cdot u_{rel}^2(w)} \quad (25)$$

Die Nachweisgrenze der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration $c_{G\beta}^{\#}$ wird aus der Erkennungsgrenze $c_{G\beta}^*$ folgendermaßen berechnet:

$$c_{G\beta}^{\#} = c_{G\beta}^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{w^2 \cdot \left(\frac{c_{G\beta}^{\#}}{t_{\beta} \cdot w} + \frac{(r_{\alpha} - r_{0,\alpha}) \cdot K_{\alpha}}{t_{\beta}} + \frac{r_{0,\beta}}{t_{\beta}} + \frac{r_{0,\beta}}{t_0} + \left(\frac{r_{\alpha}}{t_{\alpha}} + \frac{r_{0,\alpha}}{t_0} \right) \cdot K_{\alpha}^2 + u^2(K_{\alpha}) \cdot (r_{\alpha} - r_{0,\alpha})^2 \right) + c_{G\beta}^{\# 2} \cdot u_{rel}^2(w)} \quad (26)$$

3.2.6 Berechnungsbeispiel

Es werden die Alpha- und die Beta-Gesamt-Aktivitätskonzentration einer Wasserprobe berechnet.

Messzeit des Nulleffekts:	t_0	=	6000 s
Messzeit der Wasserprobe:	t_{α}	=	3600 s
Alpha-Nulleffektzählrate:	$r_{0,\alpha}$	=	0,0063 s ⁻¹
Alpha-Bruttozählrate:	r_{α}	=	0,0258 s ⁻¹
Beta-Nulleffektzählrate:	$r_{0,\beta}$	=	0,9003 s ⁻¹
Beta-Bruttozählrate:	r_{β}	=	1,1706 s ⁻¹
Alpha-Zählwirkungsgrad:	ε_{α}	=	0,414
Beta-Zählwirkungsgrad:	ε_{β}	=	0,564
Korrektionsfaktor:	K_{α}	=	1,58
Selbstabsorptionsfaktor Alpha-Strahlung:	S_{α}	=	0,9
Selbstabsorptionsfaktor Beta-Strahlung:	S_{β}	=	0,98
Probenmenge:	m	=	2 L
Unsicherheit des Zählwirkungsgrades Alpha:	$u_{rel}(\varepsilon_{\alpha})$	=	0,015
Unsicherheit des Zählwirkungsgrades Beta:	$u_{rel}(\varepsilon_{\beta})$	=	0,025
Unsicherheit des Selbstabsorptionsfaktors Alpha:	$u_{rel}(S_{\alpha})$	=	0,05
Unsicherheit des Selbstabsorptionsfaktors Beta:	$u_{rel}(S_{\beta})$	=	0,05
Unsicherheit aus der Probenherstellung:	$u_{rel}(m)$	=	0,1
Unsicherheit des Korrektionsfaktors:	$u(K_{\alpha})$	=	0,016
Quantile der standardisierten Normalverteilung:	$k_{1-\alpha}$	=	3,0
	$k_{1-\beta}$	=	1,645

Die Alpha-Nettozählrate berechnet sich zu:

$$r_{n,\alpha} = 0,0258 \text{ s}^{-1} - 0,0063 \text{ s}^{-1} = 0,0195 \text{ s}^{-1}$$

Ihre zählstatistische Messunsicherheit beträgt:

$$u(r_{n,\alpha}) = \sqrt{\frac{0,0258}{3600} + \frac{0,0063}{6000}} \text{ s}^{-1} = 0,0029 \text{ s}^{-1}$$

Der erweiterte Kalibrierfaktor wird berechnet zu:

$$w = \frac{1}{0,414 \cdot 2 \cdot 0,9} \text{ L}^{-1} = 1,342 \text{ L}^{-1}$$

Die relative Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors beträgt:

$$u_{rel}(w) = \sqrt{0,015^2 + 0,1^2 + 0,05^2} = 0,113$$

Die Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration wird aus der Nettozählrate und dem erweiterten Kalibrierfaktor berechnet:

$$c_{G\alpha} = 0,0195 \cdot 1,342 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,026 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 5.5

Seite: 12 von 30

Stand: April 2013

Die Standardmessunsicherheit der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration berechnet sich zu:

$$u(c_{G\alpha}) = \sqrt{0,026^2 \cdot 0,113^2 + 1,342^2 \cdot 0,0029^2} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,005 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Erkennungsgrenze der Alpha-Aktivitätskonzentration wird aus der Nulleffektzählrate berechnet:

$$c_{G\alpha}^* = 3,0 \cdot 1,342 \cdot \sqrt{\frac{0,0063}{3600} + \frac{0,0063}{6000}} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,007 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Nachweisgrenze der Alpha-Aktivitätskonzentration errechnet sich durch Iteration mit dem Startwert

$$c_{G\alpha}^{\#} = 2 \cdot c_{G\alpha}^* \text{ zu:}$$

$$c_{G\alpha}^{\#} = 0,007 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} + 1,645 \cdot \sqrt{1,342^2 \cdot \left(\frac{c_{G\alpha}^{\#}}{3600 \cdot 1,342} + \frac{0,0063}{3600} + \frac{0,0063}{6000} \right) + c_{G\alpha}^{\# 2} \cdot 0,113^2} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

$$c_{G\alpha}^{\#} = 0,012 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Beta-Nettozählrate berechnet sich zu:

$$r_{n,\beta} = 1,1706 \text{ s}^{-1} - 0,9003 \text{ s}^{-1} - 1,58 \cdot (0,0258 \text{ s}^{-1} - 0,0063 \text{ s}^{-1}) = 0,2395 \text{ s}^{-1}$$

Ihre zählstatistische Messunsicherheit beträgt:

$$u(r_{n,\beta}) = \sqrt{\frac{1,1706}{3600} + \frac{0,9003}{6000} + \left(\frac{0,0258}{3600} + \frac{0,0063}{6000} \right) \cdot 1,58^2 + 0,016^2 \cdot 0,0195^2} \text{ s}^{-1} = 0,0227 \text{ s}^{-1}$$

Der erweiterte Kalibrierfaktor wird berechnet zu:

$$w = \frac{1}{0,564 \cdot 2 \cdot 0,98} \text{ L}^{-1} = 0,905 \text{ L}^{-1}$$

Die relative Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors beträgt:

$$u_{\text{rel}}(w) = \sqrt{0,025^2 + 0,1^2 + 0,05^2} = 0,115$$

Die Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration wird aus der Nettozählrate und dem erweiterten Kalibrierfaktor berechnet:

$$c_{G\beta} = 0,2395 \cdot 0,905 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,217 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Standardmessunsicherheit der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration berechnet sich zu:

$$u(c_{G\beta}) = \sqrt{0,217^2 \cdot 0,115^2 + 0,905^2 \cdot 0,0227^2} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,032 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Erkennungsgrenze der Beta-Aktivitätskonzentration wird aus den Nulleffektzählraten berechnet:

$$c_{G\beta}^* = 3,0 \cdot 0,905 \cdot \sqrt{\frac{0,0195 \cdot 1,58}{3600} + \frac{0,9003}{3600} + \frac{0,9003}{6000} + \left(\frac{0,0258}{3600} + \frac{0,0063}{6000} \right) \cdot 1,58^2 + 0,016^2 \cdot 0,0195^2} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

$$c_{G\beta}^* = 0,056 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$



Die Nachweisgrenze der Beta-Aktivitätskonzentration errechnet sich durch Iteration mit dem Startwert

$$c_{\text{GB}}^{\#} = 2 \cdot c_{\text{GB}}^*$$

$$c_{\text{GB}}^{\#} = 0,056 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} +$$

$$1,645 \cdot \sqrt{0,905^2 \cdot \left(\frac{c_{\text{GB}}^{\#}}{3600 \cdot 0,905} + \frac{0,0195 \cdot 1,58}{3600} + \frac{0,9003}{3600} + \frac{0,9003}{6000} + \left(\frac{0,0258}{3600} + \frac{0,0063}{6000} \right) \cdot 1,58^2 + 0,016^2 \cdot 0,0195^2 \right) + c_{\text{GB}}^{\# 2} \cdot 0,115^2} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

$$c_{\text{GB}}^{\#} = 0,093 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

3.3 Messung mittels Gammaskpektrometrie

In diesem Beispiel wird nur die Berechnung für einen einzelnen frei stehenden Peak beschrieben. Die Anwendung der DIN ISO 11929 ist auch auf alle anderen in der Gammaskpektrometrie vorkommenden Auswertungen, wie Peak-Fit-Funktionen, Interferenzen im Peak mit Emissionen aus anderen Radionukliden möglich. Diese Verfahren sind aber sehr aufwendig und können nur noch computergestützt gelöst werden. Die Hersteller von Auswertesoftware zur Gammaskpektrometrie haben schon die DIN ISO 11929 in ihre Software integriert oder sind aktuell dabei, dies zu tun.

3.3.1 Grundlagen der Methode

Mit der Gammaskpektrometrie kann die Aktivität von einer Vielzahl von Radionukliden ohne weitere Probenvorbereitung bestimmt werden. Dabei wird die aus dem Material austretende Gammastrahlung in einem Detektor registriert. Mit Hilfe einer Elektronik wird eine Häufigkeitsverteilung über die Energie der Gammastrahlung aufgezeichnet. Diese Häufigkeitsverteilung wird mittels einer Software analysiert und die Aktivität bestimmt.

Weiterführende Informationen zu den Grundlagen der Gammaskpektrometrie finden sich in „Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors“ von K. Debertin und R. G. Helmer [4].

Die Gammaskpektrometrie wird zum Beispiel in folgenden Lösen Blättern als Messverfahren angewandt: LB 3.1.4, 3.1.6, 3.1.7, 3.1.10 [2].

3.3.2 Größen und Formelzeichen

In den nachfolgenden Gleichungen werden folgende Formelzeichen für die Größen verwendet:

a	Spezifische Aktivität in $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$
a^*	Erkennungsgrenze in $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$
$a^{\#}$	Nachweisgrenze in $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$
$\varepsilon(E)$	Zählwirkungsgrad bei der Energie E
h	Halbwertsbreite in Kanäle
$k_{1-\alpha}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 1. Art
$k_{1-\beta}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 2. Art
m	Masse der Probe in kg
n_c	korrigierte Peakfläche
n_g	Brutto-Peakfläche
n_{NP}	Netto-Peakfläche
$n_{\text{NP},0}$	Netto-Peakfläche im Nulleffekt-Spektrum
$n_{\text{NP},S}$	Netto-Peakfläche im gemessenen Spektrum der Probe
n_0	Summe der Impulse in den Untergrundkanälen
n_1	Impulse in den Untergrundkanälen, links vom Peak
n_2	Impulse in den Untergrundkanälen, rechts vom Peak



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 5.5
 Seite: 14 von 30
 Stand: April 2013

p_E	Emissionswahrscheinlichkeit für Gammastrahlung der Energie E
$u(\varepsilon(E))$	Unsicherheit des Zählwirkungsgrads bei der Energie E
$u(m)$	Unsicherheit der Masse in kg
$u(n_c)$	Unsicherheit der korrigierten Peakfläche
$u(n_{NP})$	Unsicherheit des Nettopeaks
$u(n_{NP,S})$	Unsicherheit der Netto-Peakfläche der Probe
$u(n_{NP,0})$	Unsicherheit der Netto-Peakfläche des Nulleffekts
$u(p_E)$	Unsicherheit der Emissionswahrscheinlichkeit für die Energie E
$u_{rel}(a)$	Relative Unsicherheit der Aktivität
$u_{rel}(w)$	Relative Unsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors
$u(w)$	Unsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors in kg^{-1}
t_g	Breite des Bereichs B in Kanälen
t_m	Messzeit (live time) der Probe in s
t_0	Messzeit (live time) des Nulleffekts in s
t_1	Breite des Bereichs A_1 in Kanälen
t_2	Breite des Bereichs A_2 in Kanälen
w	erweiterter Kalibrierfaktor in kg^{-1}
z_0	Untergrund unter dem Peak
n_0	Summe der Impulse in Untergrundkanälen links und rechts vom Peak
c_0	Verhältnis Peak-Kanäle zu Untergrund-Kanälen

3.3.3 Berechnung der spezifischen Aktivität

Bei der Gammaskopimetrie wird die Aktivität aus der korrigierten Nettofläche des Peaks, der Messzeit, dem Wirkungsgrad bei dieser Energie und der Emissionswahrscheinlichkeit für Gammaquanten dieser Energie bei einem Zerfall des Radionuklids ermittelt. Bei der Berechnung der spezifischen Aktivität ist noch die Masse der Probe zu berücksichtigen. Die Emissionswahrscheinlichkeit entnimmt man am besten aus den Daten des Decay Data Evaluation Projects [5]. Der Zählwirkungsgrad bei der Energie E wird mit einer Wirkungsgradkalibrierung ermittelt. Siehe dazu „Kalibrieren eines Gammaskopimeters“ in der Strahlenschutzpraxis 2/2012 [6].

$$a = \frac{n_c}{t_m \cdot \varepsilon(E) \cdot p_E \cdot m} \quad (27)$$

Mit dem erweiterten Kalibrierfaktor w :

$$w = \frac{1}{\varepsilon(E) \cdot p_E \cdot m} \quad (28)$$

ergibt sich die spezifische Aktivität zu:

$$a = \frac{n_c}{t_m} \cdot w \quad (29)$$

Um die Aktivität zu ermitteln, muss zuerst die Nettofläche des Peaks aus der Energieverteilung im Spektrum ermittelt werden.

3.3.3.1 Bestimmung der Netto-Peakfläche

Die Netto-Peakfläche wird durch Summationen ermittelt. Dazu müssen zuerst der Bereich eines Peaks und die Bereiche zur Ermittlung des Untergrunds rechts und links des Peaks festgelegt werden. Dazu findet man in der DIN ISO 11929 folgende Festlegung:

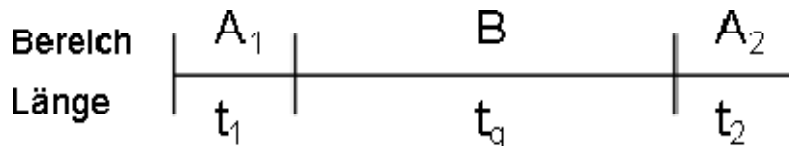


Abbildung 1: Festlegung der Bereiche laut DIN ISO 11929. Hierbei ist B der Bereich des zu betrachtenden Peaks, mit der Breite t_g . A₁ und A₂ sind die Bereiche des zu betrachtenden Untergrunds mit den Breiten t_1 und t_2 .

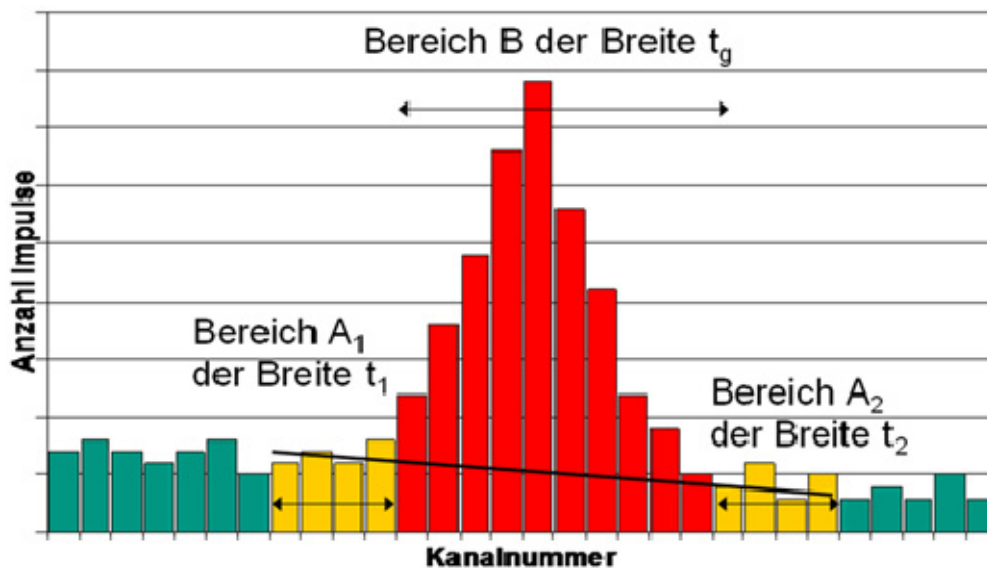


Abbildung 2: Darstellung der Bereiche zur Bestimmung der Nettofläche an einem Peak.

Der Bereich B sollte bei nicht dominierendem Untergrund etwa 2,5 Halbwertsbreiten h , bei dominierendem Untergrund 1,2 h betragen. In den KTA Regeln KTA 1503.1 (Überwachung der Kaminfortluft) [7] und KTA 1504 (Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit dem Abwasser) [8] wird eine Länge b von 1,7 Halbwertsbreiten festgelegt.

Die Breite der Bereiche A₁ und A₂ sollte nach DIN ISO 11929 bei linearem Untergrund gleich sein, so dass $t = t_1 = t_2$ gilt.

Da später auch die Nachweis- und Erkennungsgrenzen sowie der Vertrauensbereich gemäß dieser Norm zu berechnen sind, sind zwingend diese Parameter bei der Bestimmung der Nettoflächen zu verwenden. Sollte dies nicht möglich sein, sind die Parameter so zu wählen, dass diese den Vorgaben der DIN ISO 11929 möglichst nahe kommen.



Für die Bestimmung der Netto-Peakfläche n_{NP} wird zuerst der Untergrund unter dem Peak (Compton-Untergrund) berechnet. Dieser Untergrund z_0 wird aus den Inhalten der Bereiche A_1 und A_2 berechnet.

$$z_0 = n_0 \cdot c_0 \quad (30)$$

Die Summe der Untergrundimpulse ergibt sich dann zu:

$$n_0 = n_1 + n_2 \quad (31)$$

und das Kanalverhältnis zu:

$$c_0 = t_g / (t_1 + t_2) \quad (32)$$

Wird das Verhältnis der Länge der Bereiche $t_1 + t_2 = t_g$ gewählt, so wird $c_0 = 1$. Damit vereinfacht sich die Berechnung des Untergrunds z_0 zu:

$$z_0 = n_1 + n_2 \quad (33)$$

Damit ergibt sich die Netto-Peakfläche n_{NP} zu:

$$n_{NP} = n_g - (n_1 + n_2) \quad (34)$$

3.3.3.2 Berücksichtigung eines Nulleffekt-Peaks

Auch bei einer Messung ohne Probe kann in einem Gammaspektrum ein Netto-Peak auftreten. Hierbei handelt es sich um einen sogenannten Nulleffekt. Dies tritt insbesondere bei den Energien der natürlichen Radionuklide, wie z. B. der 1460-keV-Linie aus dem Zerfall von ^{40}K auf, oder wenn Kontaminationen am Detektor vorliegen. Dieser Nulleffekt muss bei der Auswertung einer Probenmessung mit berücksichtigt werden. Da derselbe Nulleffekt meist zur Auswertung vieler Proben herangezogen wird, ist es nicht nur zielführend, sondern es lohnt sich auch der Aufwand, ihn mit einer hohen Genauigkeit, sprich mit einer langen Messzeit, zu bestimmen. Der Unterschied zwischen der Messzeit der Probe t_m und der Messzeit des Nulleffekts t_0 muss dann bei der Korrektur der Peakfläche berücksichtigt werden.

$$n_c = n_{NP,S} - \left(n_{NP,0} \cdot \frac{t_m}{t_0} \right) \quad (35)$$

3.3.4 Berechnung der Messunsicherheit

Die Unsicherheit der Aktivität setzt sich aus der Unsicherheit der korrigierten Netto-Fläche und der Unsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors zusammen und wird als relative Unsicherheit wie folgt berechnet:

$$u_{\text{rel}}(A) = \sqrt{\left(\frac{u(n_c)}{n_c} \right)^2 + \left(\frac{u(w)}{w} \right)^2} \quad (36)$$

Setzt man für den erweiterten Kalibrierfaktor die Einzeltermine ein, ergibt sich die relative Unsicherheit der Aktivität wie folgt:

$$u_{\text{rel}}(A) = \sqrt{\left(\frac{u(n_c)}{n_c} \right)^2 + \left(\frac{u(p_E)}{p_E} \right)^2 + \left(\frac{u(\varepsilon(E))}{\varepsilon(E)} \right)^2 + \left(\frac{u(m)}{m} \right)^2} \quad (37)$$

Dabei ist die Unsicherheit der Messzeit nicht berücksichtigt, da diese in der Regel vernachlässigbar ist.

Die Unsicherheit der korrigierten Peakfläche ergibt sich aus den Unsicherheiten der Netto-Peakfläche und des Nulleffekts:

$$u(n_c) = \sqrt{u(n_{NP,S})^2 + \left(\frac{t_m}{t_0} \cdot u(n_{NP,0})\right)^2} \quad (38)$$

Die Unsicherheit des Nettopeaks wird aus den Impulsen der Bereiche A₁, A₂ und B wie folgt ermittelt:

$$u(n_{NP}) = \sqrt{n_g + (n_1 + n_2) \cdot c_0^2} \quad (39)$$

3.3.5 Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)

Unter der Annahme, dass kein Nulleffekt bei der zur Auswertung herangezogenen Energie vorliegt, ergibt sich die Erkennungsgrenze wie folgt:

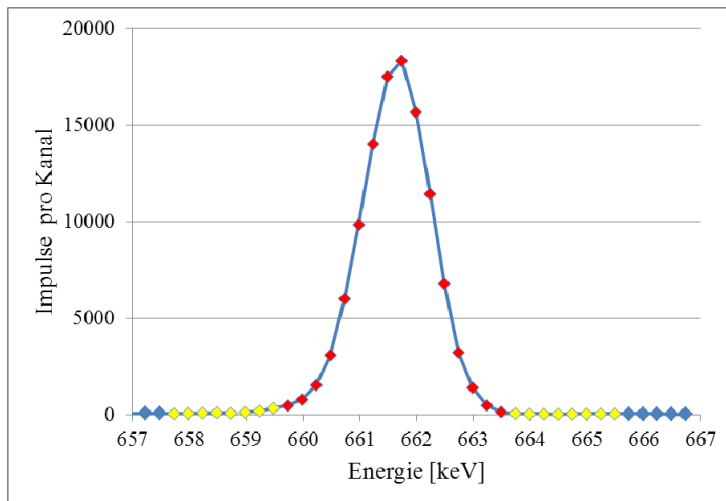
$$A^* = k_{1-\alpha} \cdot \frac{w}{t_m} \sqrt{c_0 \cdot n_0 + c_0^2 \cdot n_0} \quad (40)$$

Die Nachweisgrenze wird dann folgendermaßen berechnet:

$$A^\# = A^* + k_{1-\beta} \cdot w \cdot \sqrt{\frac{A^\#}{w \cdot t_m} + \frac{c_0 \cdot n_0 + c_0^2 \cdot n_0}{t_m^2} + \frac{A^{\#2} \cdot u_{rel}^2(w)}{w^2}} \quad (41)$$

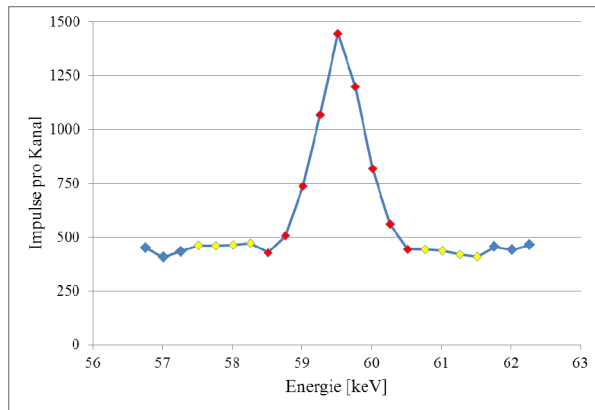
3.3.6 Berechnungsbeispiel

Die Berechnung der Aktivität von Am-241 und Cs-137 aus der gammaspektrometrischen Messung einer Bodenprobe in einem Marinelli-Becher wird als Beispiel herangezogen. In den nachfolgenden Abbildungen mit Tabellen und Grafiken sind die Kanalhalte der beiden Peakbereiche von Am-241 (Abb. 4) und Cs-137 (Abb. 3) dargestellt.



Peak bei 661,64 keV		
Kanal	Energie [keV]	Impulse pro Kanal
2629	657,73	63
2630	657,98	83
2631	658,23	102
2632	658,48	114
2633	658,73	92
2634	658,98	142
2635	659,23	202
2636	659,48	354
2637	659,73	483
2638	659,98	796
2639	660,23	1545
2640	660,48	3091
2641	660,73	6012
2642	660,98	9843
2643	661,23	14020
2644	661,48	17506
2645	661,73	18330
2646	661,98	15665
2647	662,24	11434
2648	662,49	6793
2649	662,74	3229
2650	662,99	1410
2651	663,24	493
2652	663,49	154
2653	663,74	77
2654	663,99	44
2655	664,24	45
2656	664,49	39
2657	664,74	45
2658	664,99	53
2659	665,24	54
2660	665,49	57

Abbildung 3: Darstellung eines Peaks bei 661,64 keV als Grafik sowie zur weiteren Verwendung bei der Berechnung als Tabelle. In der Grafik sind die zum Peak gehörenden Kanäle rot markiert, in der Tabelle die zugehörigen Werte grau unterlegt. Die für die Berechnung des Untergrunds verwendeten Kanäle sind in der Grafik gelb markiert.



Peak bei 59,54 keV		
Kanal	Energie [keV]	Impulse pro Kanal
231	57,51	462
232	57,76	460
233	58,01	464
234	58,26	473
235	58,51	428
236	58,76	507
237	59,01	737
238	59,26	1069
239	59,51	1446
240	59,76	1199
241	60,01	818
242	60,27	561
243	60,52	444
244	60,77	444
245	61,02	438
246	61,27	420
247	61,52	410

Abbildung 4: Darstellung eines Peaks bei 59,54 keV als Grafik sowie zur weiteren Verwendung bei der Berechnung als Tabelle. In der Grafik sind die zum Peak gehörenden Kanäle rot markiert, in der Tabelle die zugehörigen Werte grau unterlegt. Die für die Berechnung des Untergrunds verwendeten Kanäle sind in der Grafik gelb markiert.

Für das Beispiel werden die Werte in der unten stehenden Tabelle angenommen. Dabei wird davon ausgegangen, dass bei einer vorangegangenen Nulleffektmessung festgestellt wurde, dass es keinen Beitrag zu den Nettopeaks bei 59,54 keV und 661,64 keV gibt und somit $n_{NP,0}$, der Nettopeak des Nulleffekts, gleich Null ist. Berechnet man aus den oben angegebenen Kanalgehalten die Nettoflächen und verwendet die in der unten stehenden Tabelle angegebenen Eingangswerte, erhält man die ebenfalls in dieser Tabelle angegebenen Nettoflächen, Unsicherheiten der Nettoflächen, Aktivitäten mit zugehörigen Unsicherheiten sowie Erkennungs- und Nachweisgrenzen.



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 5.5
 Seite: 20 von 30
 Stand: April 2013

Tabelle 2: Eingangswerte, Zwischen- und Endergebnisse für die Aktivitätsberechnung sowie die Erkennungs- und Nachweisgrenzen.

	Am-241 (59,54 keV)	Cs-137 (661,657 keV)
p_E	0,3592	0,8499
$u(p_E)$	0,0017	0,0020
$\varepsilon(E)$	0,00659	0,01088
$u(\varepsilon(E))$	0,000791	0,000653
n_c	3191,625	109 238
$u(n_c)$	84,902	330,512
m	1,08 kg	
$u(m)$	0,005 kg	
t_m	62 000 s	
$k_{1-\alpha}$	3,0	
$k_{1-\beta}$	1,645	
w	391,160 kg ⁻¹	100,134 kg ⁻¹
$u(w)$	47,0106 kg ⁻¹	6,0304 kg ⁻¹
a	20,1361 Bq·kg ⁻¹	176,4256 Bq·kg ⁻¹
$u(a)$	2,4786 Bq·kg ⁻¹	10,6385 Bq·kg ⁻¹
a^*	1,749 Bq·kg ⁻¹	0,271 Bq·kg ⁻¹
$a^\#$	2,887 Bq·kg ⁻¹	0,432 Bq·kg ⁻¹



3.4 Überwachung der Sr-90 - Aktivität von Kuhmilch

3.4.1 Grundlagen der Methode

Die Methode ist in dem Losen Blatt 3.1.9 „Überwachung der Sr-90-Aktivität von Kuhmilch“ [2] beschrieben.

3.4.2 Größen und Formelzeichen

In den nachfolgenden Gleichungen werden folgende Formelzeichen für die Größen verwendet:

t_p	Zeitpunkt der Probenentnahme
t_1	Zeitpunkt der ersten ^{90}Y -Abtrennung
t_2	Zeitpunkt der zweiten ^{90}Y -Abtrennung
t_Y	mittlerer Zeitpunkt der ^{90}Y -Messung
f_1	Umrechnungsfaktor der Aktivität zum Zeitpunkt der Probenentnahme
f_2	Aufbaufaktor für das unvollständige Wachstum von Yttrium-90 zwischen den Zeitpunkten t_1 und t_2
$\lambda_{\text{Sr-90}}$	Zerfallskonstante des ^{90}Sr in s^{-1}
$\lambda_{\text{Y-90}}$	Zerfallskonstante des ^{90}Y in s^{-1}
$c_{\text{Sr-90}}$	Aktivitätskonzentration der Frischmilch zur Zeit der Probenentnahme in $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$
m	Trockenmilch-Einwaage in g
ρ	Trockenmilchanteil der Frischmilch in $\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$
η_{Sr}	Chemische Ausbeute von Strontium
η_{Y}	Chemische Ausbeute von Yttrium
ε_{Y}	Zählausbeute von ^{90}Y
r_Y	Zählrate in s^{-1} des ^{90}Y zum mittleren Zeitpunkt t_Y der Messung
$r(t_2)$	Zählrate in s^{-1} des ^{90}Y , auf den Zeitpunkt der zweiten ^{90}Y -Abtrennung berechnet
r_0	Nulleffektzählrate in s^{-1}
r_b	Bruttozählrate in s^{-1}
r_Y	Nettozählrate in s^{-1}
$u(r_Y)$	Standardmessunsicherheit der Zählrate zum Zeitpunkt der Messung t_Y in s^{-1}
t_b	Messzeit der Probe in s
t_0	Messzeit des Nulleffektes in s
$k_{1-\alpha}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 1. Art
$k_{1-\beta}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 2. Art

3.4.3 Berechnung der Aktivität

Falls nur eine Einzelmessung durchgeführt wird, beträgt die Zählrate am Zeitpunkt der zweiten ^{90}Y -Abtrennung:

$$r(t_2) = r_Y \cdot e^{\lambda_{\text{Y-90}}(t_Y - t_2)} = (r_b - r_0) \cdot e^{\lambda_{\text{Y-90}}(t_Y - t_2)} \quad (42)$$

Die Aktivitätskonzentration der Frischmilch in $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ zum Zeitpunkt der Probenentnahme berechnet sich gemäß der Gleichung:

$$c_{\text{Sr-90}} = \frac{(r_b - r_0) \cdot e^{\lambda_{\text{Y-90}}(t_Y - t_2)} \cdot \rho}{m \cdot \varepsilon_{\text{Y}} \cdot \eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{\text{Y}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Sr-90}}(t_1 - t_p)} \cdot (1 - e^{-\lambda_{\text{Y-90}}(t_2 - t_1)})} \quad (43)$$

mit $e^{-\lambda_{\text{Sr-90}}(t_1 - t_p)} = f_1$ Umrechnungsfaktor der Aktivität auf den Zeitpunkt der Probenentnahme

und $1 - e^{-\lambda_{\text{Y-90}}(t_2 - t_1)} = f_2$ Aufbaufaktor für die unvollständige $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Gleichgewichtseinstellung zwischen den Zeitpunkten t_1 und t_2 .

Gleichung (43) kann durch die Einführung eines erweiterten Kalibrierfaktors w wie folgt geschrieben werden:

$$c_{\text{Sr-90}} = (r_b - r_0) \cdot w = r_Y \cdot w \quad (44)$$

mit

$$w = \frac{e^{\lambda_{\text{Y-90}} \cdot (t_Y - t_2)} \cdot \rho}{m \cdot \varepsilon_Y \cdot \eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_Y \cdot e^{-\lambda_{\text{Sr-90}} \cdot (t_1 - t_p)} \cdot (1 - e^{-\lambda_{\text{Y-90}} \cdot (t_2 - t_1)})} \quad (45)$$

3.4.4 Berechnung der Messunsicherheit

Die Standardmessunsicherheit $u(c_{\text{Sr-90}})$ ergibt sich dann wie folgt:

$$u(c_{\text{Sr-90}}) = \sqrt{r_Y^2 \cdot u^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_Y)} = \sqrt{c_{\text{Sr-90}}^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_Y)} \quad (46)$$

Falls nur eine Einzelmessung von ^{90}Y durchgeführt wird, kann die Standardmessunsicherheit der Zählrate zum Zeitpunkt der Messung t_Y wie folgt berechnet werden:

$$u(r_Y) = \sqrt{\left(\frac{r_b}{t_b} + \frac{r_0}{t_0}\right)} \quad (47)$$

Die Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w setzt sich, wie in Kapitel 2.2 beschrieben, aus den Unsicherheiten all seiner Eingangsgrößen zusammen.

$$u_{\text{rel}}(w) = \sqrt{u_{\text{rel}}^2(m) + u_{\text{rel}}^2(\rho) + u_{\text{rel}}^2(\eta_Y) + u_{\text{rel}}^2(\eta_{\text{Sr}}) + u_{\text{rel}}^2(\varepsilon_Y)} \quad (48)$$

3.4.5 Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)

Wenn eine Einzelmessung durchgeführt wird, kann die Erkennungsgrenze $c_{\text{Sr-90}}^*$ zur Zeit der Probenentnahme wie folgt berechnet werden:

$$c_{\text{Sr-90}}^* = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot \sqrt{\left(\frac{r_0}{t_b} + \frac{r_0}{t_0}\right)} \quad (49)$$

Die Nachweisgrenze $c_{\text{Sr-90}}^\#$ kann dann wie folgt berechnet werden:

$$c_{\text{Sr-90}}^\# = c_{\text{Sr-90}}^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{c_{\text{Sr-90}}^{\#2} \cdot u_{\text{rel}}^2(w) + w^2 \cdot \left(\frac{c_{\text{Sr-90}}^\#}{t_b \cdot w} + \frac{r_0}{t_b} + \frac{r_0}{t_0}\right)} \quad (50)$$

Wenn $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = k$ ist, kann die implizite Gleichung in eine quadratische Gleichung umgewandelt werden, deren Lösung für die Nachweisgrenze folgendes Aussehen hat:

$$c_{\text{Sr-90}}^\# = \frac{2 \cdot c_{\text{Sr-90}}^* + k^2 \cdot \frac{w}{t_b}}{1 - k^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w)} \quad (51)$$



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 5.5
Seite: 23 von 30
Stand: April 2013

3.4.6 Berechnungsbeispiel

Bestimmung der Aktivitätskonzentration $c_{\text{Sr-90}}$ in Frischmilch:

Zeitpunkt der Probenentnahme	t_p	= 09.08.2000, 12 Uhr
Zeitpunkt der ersten ^{90}Y Abtrennung	t_1	= 13.09.2000, 10 Uhr
Zeitpunkt der zweiten ^{90}Y Abtrennung	t_2	= 24.09.2000, 11 Uhr
Mittlerer Zeitpunkt der ^{90}Y Einzelmessung	t_Y	= 24.09.2000, 17 Uhr
Zerfallskonstante von ^{90}Sr	$\lambda_{\text{Sr-90}}$	= $2,746 \cdot 10^{-6} \text{ h}^{-1}$
Zerfallskonstante von ^{90}Y	$\lambda_{\text{Y-90}}$	= $0,0108 \text{ h}^{-1}$
Trockenmilch Einwaage (g)	m	= 90 (entspricht 0,7 L Milch)
Trockenmilchanteil der Frischmilch ($\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$)	ρ	= 129
Chemische Ausbeute von Strontium	η_{Sr}	= 0,98
Chemische Ausbeute von Yttrium	η_{Y}	= 0,89
Zählausbeute von ^{90}Y	$\varepsilon_{\text{Y-90}}$	= 0,4750
Nulleffektzählrate (s^{-1})	r_0	= 0,0044
Messzeit des Nulleffektes (s)	t_0	= 100000
Bruttozählrate der Probe (s^{-1})	r_b	= 0,0604
Zählrate von ^{90}Y bei t_Y (s^{-1})	r_Y	= 0,0560
Messzeit von ^{90}Y (s)	t_b	= 14400
Quantile der standardisierten Normalverteilung	$k_{1-\alpha}$	= 1,645
	$k_{1-\beta}$	= 1,645

Zunächst berechnet man die Zählrate von ^{90}Y zum Zeitpunkt der zweiten ^{90}Y Abtrennung:

$$r(t_2) = 0,0560 \cdot e^{0,0108 \cdot 6,0} \text{ s}^{-1} = 0,0560 \cdot 1,0669 \text{ s}^{-1} = 0,0597 \text{ s}^{-1}$$

Der Umrechnungsfaktor f_1 auf den Zeitpunkt der Probenentnahme ergibt sich zu:

$$f_1 = e^{-2,746 \cdot 10^{-6} \cdot 838} = 0,998$$

Der Aufbaufaktor f_2 für die unvollständige Neueinstellung des Gleichgewichtes von ^{90}Y mit ^{90}Sr ergibt sich zu:

$$f_2 = 1 - e^{-0,0108 \cdot 265} = 0,943$$

Der gesamte, erweiterte Kalibrierfaktor w wird berechnet zu:

$$w = \frac{1,0669 \cdot 129}{90 \cdot 0,475 \cdot 0,98 \cdot 0,89 \cdot 0,998 \cdot 0,943} \text{ L}^{-1} = 3,922 \text{ L}^{-1}$$

Die Aktivitätskonzentration des ^{90}Sr in der Frischmilch $c_{\text{Sr-90}}$ in $\text{Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ zum Zeitpunkt der Probenentnahme ergibt sich zu:

$$c_{\text{Sr-90}} = 0,0560 \cdot 3,922 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,220 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Zählstatistische Messunsicherheit der ^{90}Y -Messung:

$$u(r_Y) = \sqrt{\frac{0,0604}{14400} + \frac{0,0044}{100000}} \text{ s}^{-1} = 0,00206 \text{ s}^{-1}$$



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 5.5
 Seite: 24 von 30
 Stand: April 2013

Die relative zählstatistische Messunsicherheit der Aktivitätskonzentration der Frischmilch:

$$\frac{u(r_Y)}{r_Y} = \frac{0,00206}{0,0560} = 0,0368$$

Relative Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors $u_{rel}(w)$:

Die Bestimmung der Zählausbeute für ^{90}Y erfolgt durch Abtrennung des ^{90}Y aus einer $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ Standard-Lösung (nur die zweite Yttrium-Abtrennung ist notwendig). Die Messunsicherheit der Zählausbeute wird durch folgende Beiträge bestimmt:

- Unsicherheit der Ausbeute von Yttrium: ca. 1 %
- Unsicherheit der Aktivitätskonzentration der Standardlösung: < 1 %
- Unsicherheiten von Wägungen: ca. 1 %, und Volumina beim Pipettieren: ca. 2 %
- Zählstatistischer Beitrag zur Messunsicherheit: ca. 1 bis 1,5 %, da die Aktivität der Probe bei der Kalibrierung hoch ist

Die kombinierte relative Standardmessunsicherheit der Zählausbeute $u_{rel}(\varepsilon_Y)$ beträgt somit ca. 3 %.

Die wichtigsten Unsicherheitsbeiträge bei der Probenbehandlung und der chemischen Abtrennung von ^{90}Sr und ^{90}Y sind folgende:

- Ausbeute für Strontium, Bestimmung durch AAS $u_{rel}(\eta_{\text{Sr}})$: ca. 1,5 %
- Ausbeute für Yttrium, Bestimmung durch photometrische Titration $u_{rel}(\eta_Y)$: ca. 1 %
- Massen und Volumina: insgesamt $u_{rel}(m)$ und $u_{rel}(\rho)$ je ca. 3 %

Setzt man die oben angegebenen Maximalwerte für die einzelnen relativen Unsicherheiten ein, ergibt sich die Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w zu 5,5 %.

$$u_{rel}(w) = \sqrt{0,03^2 + 0,03^2 + 0,01^2 + 0,015^2 + 0,03^2} = 0,055$$

Die Unsicherheit der Aktivitätskonzentration von ^{90}Sr in der Frischmilch:

$$u(c_{\text{Sr-90}}) = \sqrt{0,220^2 \cdot 0,055^2 + 3,922^2 \cdot \left(\frac{0,0604}{14400} + \frac{0,0044}{100000} \right)} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,0145 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Erkennungsgrenze $c_{\text{Sr-90}}^*$ wird berechnet:

$$c_{\text{Sr-90}}^* = 1,645 \cdot 3,922 \cdot \sqrt{\left(\frac{0,0044}{14400} + \frac{0,0044}{100000} \right)} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,0038 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Nachweisgrenze $c_{\text{Sr-90}}^\#$ ergibt sich zu:

$$c_{\text{Sr-90}}^\# = 0,0038 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} + 1,645 \cdot \sqrt{c_{\text{Sr-90}}^{\#2} \cdot 0,055^2 + 3,922^2 \cdot \left(\frac{c_{\text{Sr-90}}^\#}{14400 \cdot 3,922} + \frac{0,0044}{14400} + \frac{0,0044}{100000} \right)} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

Die Lösung erhält man entweder durch manuelle Iteration mit dem Startwert $c_{\text{Sr-90}}^\# = 2 \cdot c_{\text{Sr-90}}^*$ oder berechnet sie alternativ direkt in einer Zelle in Excel, indem man Excel erlaubt, Zirkelbezüge durch Iteration zu lösen.

Tabelle 3: Berechnung der Nachweisgrenze durch 4 Iterationsschritte

	Nachweisgrenze	Differenz
Startwert	0,0076	-
1. Iteration	0,00834138	0,00074138
2. Iteration	0,00841165	0,00007027
3. Iteration	0,00841830	0,00000665
4. Iteration	0,00841893	0,00000063

Die Nachweisgrenze für das Beispiel, berechnet durch Iteration, beträgt $c_{\text{Sr-90}}^{\#} = 0,00842 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$.

Die Nachweisgrenze für das Beispiel, berechnet durch die Näherungslösung als quadratische Gleichung, beträgt:

$$c_{\text{Sr-90}}^{\#} = \frac{2 \cdot 0,0038 + 1,645^2 \cdot \frac{3,922}{14400}}{1 - 1,645^2 \cdot 0,055^2} \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1} = 0,00841 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$$

3.5 Überwachung der Plutoniumaktivität in Boden

3.5.1 Grundlagen der Methode

Eine Methode zur Bestimmung von Plutonium in Boden ist im Losen Blatt 3.4.11 „Überwachung der Plutonium- und Americium-Aktivität in Boden“ [2] beschrieben und basiert auf einem Trennungsgang, der im „Institut de Radiophysique Appliquée“ (IRA), der Universität Lausanne von J.-J. Geering und P. Froidevaux entwickelt wurde und die Bestimmung von Pu-238, Pu-(239+240) und Am-241 in Boden- und Sedimentproben beschreibt. Hier wird jedoch nur die Auswertung der Pu-Isotope betrachtet. Die Zahlen des Berechnungsbeispiels stammen aus der routinemäßigen Umweltüberwachung.

Die Bodenprobe wird zunächst vorbereitet (z. B. getrocknet, gemahlen und geglüht). Nach Zusatz einer genau bekannten Aktivität von Pu-242 oder Pu-236 als radiochemischem Ausbeute-Tracer erfolgt dann ein Aufschluss bevor in einem Trennungsgang Plutonium vom Americium getrennt wird, um schließlich auf einem Edelstahlplättchen elektrolytisch abgeschieden zu werden. Die Messung erfolgt mit Hilfe eines Alpha-Spektrometers.

3.5.2 Größen und Formelzeichen

In den nachfolgenden Gleichungen werden folgende Formelzeichen für die Größen verwendet:

$a_{\text{Pu-2xx}}$	Massenbezogene Aktivität der Plutoniumisotope (Pu-238 und Pu-239/40) zum Zeitpunkt der Messung in $\text{Bq} \cdot \text{g}^{-1}$
$c_{\text{A,Tr}}$	Aktivität des Tracernuklids Tr pro Volumen zum Zeitpunkt der Messung in $\text{Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$
V_{Tr}	Volumen des Tracers in mL
m	Einwaage Probenaliquot in g
$r_{\text{b,Pu-2xx}}$	Brutto-Zählrate der Plutoniumisotope (Pu-238 und Pu-239/40) in s^{-1}
$r_{\text{0,Pu-2xx}}$	Nulleffekt-Zählrate der Plutoniumisotope (Pu-238 und Pu-239/40) in s^{-1}
$r_{\text{n,Pu-2xx}}$	Netto-Zählrate der Plutoniumisotope (Pu-238 und Pu-239/40) in s^{-1}
$r_{\text{b,Tr}}$	Brutto-Zählrate des Tracernuklids Tr in s^{-1}
$r_{\text{0,Tr}}$	Nulleffekt-Zählrate des Tracernuklids Tr in s^{-1}

t_m	Messzeit der Proben in s
t_0	Messzeit des Nulleffekts in s
f	Probenvorbereitungsfaktor (im Bsp.: Veraschungsfaktor ($m_{\text{Asche}}:m_{\text{Frisch}}$))
w	Erweiterter Kalibrierfaktor w nach DIN ISO 11929 in $\text{Bq}\cdot\text{s}\cdot\text{g}^{-1}$
$k_{1-\alpha}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 1. Art
$k_{1-\beta}$	Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 2. Art
$u_{\text{rel}}(c_{\text{A,Tr}})$	Relative Messunsicherheit der Traceraktivitätskonzentration
$u_{\text{rel}}(V_{\text{Tr}})$	Relative Messunsicherheit des Tracervolumens
$u_{\text{rel}}(m)$	Relative Messunsicherheit des Probenaliquots
$u_{\text{rel}}(f)$	Relative Messunsicherheit des Probenvorbereitungsfaktors
$u(r_{\text{n,Pu-2xx}})$	Standardmessunsicherheit der Zählrate des Plutonium-Isotops in s^{-1}

3.5.3 Berechnung der Aktivität

Die massenbezogene Aktivität $a_{\text{Pu-2xx}}$ der Plutoniumisotope Pu-238 und Pu-239/40 lässt sich allgemein bestimmen durch:

$$a_{\text{Pu-2xx}} = \frac{c_{\text{A,Tr}} \cdot V_{\text{Tr}}}{m} \cdot \left(\frac{r_{\text{b,Pu-2xx}} - r_{\text{0,Pu-2xx}}}{r_{\text{b,Tr}} - r_{\text{0,Tr}}} \right) \cdot f \quad (52)$$

Diese Gleichung kann durch die Einführung eines erweiterten Kalibrierfaktors w wie folgt geschrieben werden:

$$a_{\text{Pu-2xx}} = (r_{\text{b,Pu-2xx}} - r_{\text{0,Pu-2xx}}) \cdot w = r_{\text{n,Pu-2xx}} \cdot w$$

mit $w = \frac{c_{\text{A,Tr}} \cdot V_{\text{Tr}}}{m \cdot (r_{\text{b,Tr}} - r_{\text{0,Tr}})} \cdot f \quad (53)$

3.5.4 Berechnung der Messunsicherheit

Die Standardmessunsicherheit $u(a_{\text{Pu-2xx}})$ ergibt sich dann wie folgt:

$$u(a_{\text{Pu-2xx}}) = \sqrt{(r_{\text{n,Pu-2xx}})^2 \cdot u^2(w) + u^2(r_{\text{n,Pu-2xx}}) \cdot w^2} = \sqrt{a_{\text{Pu-2xx}}^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w) + w^2 \cdot u^2(r_{\text{n,Pu-2xx}})} \quad (54)$$

Die Standardmessunsicherheit der Zählrate des zu bestimmenden Pu-Isotops kann wie folgt berechnet werden:

$$u(r_{\text{n,Pu-2xx}}) = \sqrt{\frac{r_{\text{b,Pu-2xx}}}{t_m} + \frac{r_{\text{0,Pu-2xx}}}{t_0}} \quad (55)$$

Die Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w setzt sich, wie in Kapitel 2.2 beschrieben, aus den Unsicherheiten all seiner Eingangsgrößen zusammen.

Die relative zählstatistische Standardmessunsicherheit des Tracernuklids $u_{\text{rel}}(r_{\text{b,Tr}} - r_{0,\text{Tr}})$ kann berechnet werden mit:

$$u_{\text{rel}}(r_{\text{b,Tr}} - r_{0,\text{Tr}}) = \sqrt{\frac{\left(\frac{r_{\text{b,Tr}}}{t_{\text{m}}} + \frac{r_{0,\text{Tr}}}{t_0}\right)}{(r_{\text{b,Tr}} - r_{0,\text{Tr}})^2}} \quad (56)$$

Damit ergibt sich für die Berechnung der Standardmessunsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors w , $u_{\text{rel}}(w)$ die Gleichung

$$u_{\text{rel}}(w) = \sqrt{u_{\text{rel}}^2(c_{\text{A,Tr}}) + u_{\text{rel}}^2(V_{\text{Tr}}) + u_{\text{rel}}^2(m) + \frac{\left(\frac{r_{\text{b,Tr}}}{t_{\text{m}}} + \frac{r_{0,\text{Tr}}}{t_0}\right)}{(r_{\text{b,Tr}} - r_{0,\text{Tr}})^2} + u_{\text{rel}}^2(f)} \quad (57)$$

3.5.5 Berechnung der Charakteristischen Grenzen (Erkennungs- und Nachweisgrenze)

Die Erkennungsgrenze eines Plutoniumisotops $a_{\text{Pu-2xx}}^*$ zum Zeitpunkt der Messung lässt sich bestimmen durch:

$$a_{\text{Pu-2xx}}^* = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot \sqrt{r_{0,\text{Pu-2xx}} \cdot \left(\frac{1}{t_{\text{m}}} + \frac{1}{t_0}\right)} \quad (58)$$

Die Nachweisgrenze eines Plutoniumisotops $a_{\text{Pu-2xx}}^\#$ kann danach wie folgt berechnet werden:

$$a_{\text{Pu-2xx}}^\# = a_{\text{Pu-2xx}}^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(a_{\text{Pu-2xx}}^\#\right)^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w) + w^2 \cdot \left(\frac{a_{\text{Pu-2xx}}^\#}{t_{\text{m}} \cdot w} + \frac{r_{0,\text{Pu-2xx}}}{t_{\text{m}}} + \frac{r_{0,\text{Pu-2xx}}}{t_0}\right)} \quad (59)$$

3.5.6 Berechnungsbeispiel

Die Daten des Berechnungsbeispiels werden einer realen Umweltbodenprobe entnommen. Im Berechnungsbeispiel wird die Bodenprobe auf das Radionuklid Pu-238 analysiert. Berechnet werden die massenbezogene Aktivität, deren Messunsicherheit, sowie die Erkennungs- und Nachweisgrenze.

Aktivitätskonzentration des Tracers Pu-236

zum Zeitpunkt der Messung

$$c_{\text{A,Tr}} = 0,1245 \text{ Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$$

Volumen des Tracers Pu-236

$$V_{\text{Tr}} = 1 \text{ mL}$$

Einwaage Probenaliquot

$$m = 100 \text{ g}$$

Brutto-Zählrate des Plutoniumisotopes Pu-238

$$r_{\text{b,Pu-238}} = 1,91 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

Nulleffekt-Zählrate des Plutoniumisotopes Pu-238

$$r_{0,\text{Pu-238}} = 8,33 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$$

Brutto-Zählrate des Tracernuklids Tr

$$r_{\text{b,Tr}} = 1,71 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$$

Nulleffekt-Zählrate des Tracernuklids Tr

$$r_{0,\text{Tr}} = 8,33 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$$



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 5.5
 Seite: 28 von 30
 Stand: April 2013

Messzeit der Proben	t_m	=	$6 \cdot 10^4$ s
Messzeit des Nulleffekts	t_0	=	$6 \cdot 10^4$ s
Veraschungsfaktor ($m_{\text{Asche}}:m_{\text{Frisch}}$)	f	=	0,95
Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 1. Art	$k_{1-\alpha}$	=	1,645
Quantil der standardisierten Normalverteilung für den Fehler 2. Art.	$k_{1-\beta}$	=	1,645
Relative Messunsicherheit der Traceraktivitätskonzentration	$u_{\text{rel}}(c_{\text{A,Tr}})$	=	0,10
Relative Messunsicherheit des Tracervolumens	$u_{\text{rel}}(V_{\text{Tr}})$	=	0,01
Relative Messunsicherheit des Probenaliquots	$u_{\text{rel}}(m)$	=	0,01
Relative Messunsicherheit des Veraschungsfaktors	$u_{\text{rel}}(f)$	=	0,03

uerst wird die massenbezogene Pu-238 Aktivität $a_{\text{Pu-238}}$ der Probe berechnet:

$$a_{\text{Pu-238}} = \frac{0,1245 \cdot 1}{100} \cdot \left(\frac{0,00191 - 8,33 \cdot 10^{-5}}{0,0171 - 8,33 \cdot 10^{-5}} \right) \cdot 0,95 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1} = 127 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$$

Zur Berechnung der Messunsicherheit des Ergebnisses werden der erweiterte Kalibrierfaktor und dessen relative Messunsicherheit benötigt:

$$w = \frac{0,1245 \cdot 1}{100 \cdot (0,0171 - 8,33 \cdot 10^{-5})} \cdot 0,95 \text{ g}^{-1} = 0,0695 \text{ g}^{-1}$$

$$u_{\text{rel}}^2(w) = 0,10^2 + 0,01^2 + 0,01^2 + \frac{\left(\frac{0,0171 + 8,33 \cdot 10^{-5}}{60000} + \frac{8,33 \cdot 10^{-5}}{60000} \right)}{\left(0,0171 - 8,33 \cdot 10^{-5} \right)^2} + 0,03^2 = 0,0121$$

Es ergibt sich die absolute Messunsicherheit der massenbezogenen Aktivität $u(a_{\text{Pu-238}})$:

$$u(a_{\text{Pu-238}}) = \sqrt{(127 \cdot 10^{-6})^2 \cdot 0,0121 + (0,0695)^2} \cdot \left(\frac{1,91 \cdot 10^{-3}}{60000} + \frac{8,33 \cdot 10^{-5}}{60000} \right) \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$$

$$u(a_{\text{Pu-238}}) = 18,9 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$$

Die Erkennungsgrenze wird wie folgt berechnet:

$$a_{\text{Pu-238}}^* = 1,645 \cdot 0,0695 \cdot \sqrt{8,33 \cdot 10^{-5} \cdot \left(\frac{1}{60000} + \frac{1}{60000} \right)} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$$

$$a_{\text{Pu-238}}^* = 6 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$$

Die Nachweisgrenze ergibt sich mit:

$$a_{\text{Pu-238}}^{\#} = 6 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1} +$$

$$1,645 \cdot \sqrt{(a_{\text{Pu-238}}^{\#})^2 \cdot 0,0121 + 0,0695^2} \cdot \left(\frac{a_{\text{Pu-238}}^{\#}}{60000 \cdot 0,0695} + \frac{8,33 \cdot 10^{-5}}{60000} + \frac{8,33 \cdot 10^{-5}}{60000} \right) \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$$

Die Nachweisgrenze ist eine nicht explizit lösbare Gleichung. Die Lösung der Gleichung wird durch Iteration erhalten. Startwert der Iteration ist: $a_{\text{Pu-238}}^{\#} = 2 \cdot a_{\text{Pu-238}}^*$

Tabelle 4: Berechnung der Nachweisgrenze durch 4 Iterationsschritte

	Nachweisgrenze	Differenz
Startwert	1,200 E-05	-
1. Iteration	1,487 E-05	-2,867 E-06
2. Iteration	1,549 E-05	-6,268 E-07
3. Iteration	1,563 E-05	-1,353 E-07
4. Iteration	1,566 E-05	-2,914 E-08

Die Nachweisgrenze für das Rechenbeispiel nach Iteration beträgt $a_{\text{Pu-238}}^{\#} = 15,66 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$

Wenn $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = k$ ist, kann die implizite Gleichung für die Nachweisgrenze in eine quadratische Gleichung umgewandelt werden:

$$a_{\text{Pu-238}}^{\#} = \frac{2 \cdot 6 \cdot 10^{-6} + 1,645^2 \cdot \frac{0,0695}{60000}}{1 - 1,645^2 \cdot 0,0121} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1} = 15,65 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$$

Die Nachweisgrenze für das Beispiel, berechnet durch die Lösung der quadratischen Gleichung, beträgt $a_{\text{Pu-238}}^{\#} = 15,65 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$.



4 Literatur

- [1] Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen (ISO 11929:2010, DIN ISO 11929, 2011, Beuth-Verlag Berlin.
- [2] Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Loseblattsammlung des Arbeitskreises Umweltüberwachung, Fachverband für Strahlenschutz e.V. (Hrsg.), FS-78-15-AKU, ISSN 1013-4506, Dezember 2012, www.fs-ev.de
- [3] Charakteristische Grenzen nach DIN ISO 11929, Linda Peters, Leibniz Universität Hannover, Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, www.irs.uni-hannover.de, 2012
- [4] Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors, K. Debertin und R.G. Helmer, 1989, Elsevier Science, ISBN 978-0444871077
- [5] Recommended data and their evaluation, Decay Data Evaluation Project, www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm, 4.1.2013
- [6] Kalibrieren eines Gammaskpektrometers, Chr. Wilhelm, Strahlenschutzpraxis Heft 2/2012, ISSN 0947-43 X
- [7] Überwachung der Ableitung gasförmiger und an Schwebstoffen gebundener radioaktiver Stoffe, Teil 1, Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminfortluft bei bestimmungsgemäßem Betrieb, KTA 1503.1, Juni 2002
- [8] Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Wasser, KTA 1504, November 2007