



Bundesamt
für Strahlenschutz

Ressortforschungsberichte zum Strahlenschutz

Überprüfung der Berechnung charakteristischer
Grenzen nach DIN EN ISO 11929 in verbreiteter
Spektrometrie-Software

Vorhaben 3622S22320

IAF-Radioökologie GmbH

R. Arndt
Dr. H. Hummrich
Dr. F. Kandzia
Dr. C. Kunze
Dr. C. Lucks
Dr. U. Hoepfener-Kramar
Dr. G. Fritz

Das Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz,
nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) und im Auftrag des Bundesamtes
für Strahlenschutz (BfS) durchgeführt.

Dieser Band enthält einen Ergebnisbericht eines vom Bundesamt für Strahlenschutz im Rahmen der Ressortforschung des BMUV (Ressortforschungsplan) in Auftrag gegebenen Untersuchungsvorhabens. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BfS übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung ganz oder teilweise vervielfältigt werden.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der des BfS übereinstimmen.

Impressum

Bundesamt für Strahlenschutz
Postfach 10 01 49
38201 Salzgitter

Tel.: +49 30 18333-0

Fax: +49 30 18333-1885

E-Mail: ePost@bfs.de

De-Mail: epost@bfs.de-mail.de

www.bfs.de

BfS-RESFOR-229/24

Bitte beziehen Sie sich beim Zitieren dieses Dokumentes immer auf folgende URN:

urn:nbn:de:0221-2024090345840

Salzgitter, August 2024

Überprüfung der Berechnung charakteristischer Grenzen nach DIN EN ISO 11929 in verbreiteter Spektrometrie-Software

Schlussbericht

Auftraggeber: Bundesamt für Strahlenschutz
Köpenicker Allee 120-130
10318 Berlin

Projektname: Überprüfung der Berechnung charakteristischer Grenzen nach DIN EN ISO 11929 in verbreiteter Spektrometrie-Software

FKZ: 3622S22320

Auftragnehmer: IAF-Radioökologie GmbH
Wilhelm-Rönsch-Str. 9
01454 Radeberg

Autoren: Robert Arndt, Dr. Holger Hummrich, Dr. Felix Kandzia,
Dr. Christian Kunze, Dr. Christian Lucks (IAF)
Dr. Ursula Hoepfener-Kramar, Dr. Gerhard Fritz

Radeberg, den 31.12.2023



Dr. rer. nat. Christian Lucks
Projektleiter

Wilhelm-Rönsch-Str. 9
01454 Radeberg
Tel. +49 (0) 3528 48730-0
Fax +49 (0) 3528 48730-22
E-Mail info@iaf-dresden.de

Geschäftsführer:
Dr. rer. nat. habil. Hartmut Schulz
Dr. rer. nat. Christian Kunze
Dipl.-Ing. (BA) René Baumert
Handelsregister: HRB 9185
Amtsgericht Dresden

Bankverbindung:
HypoVereinsbank Dresden
IBAN: DE92 8502 0086 5360 1794 29
SWIFT (BIC): HYVEDEMM496

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	13
2	Bearbeitete Teilaufgaben in AP 1.....	14
2.1	Aufgabenstellung	14
2.2	Kontaktierung der Inkorporationsmessstellen	14
2.3	Identifizierung der am meisten verbreiteten Software.....	17
2.4	Auswahl der im Vorhaben zu untersuchenden Softwarepakete	18
2.5	Literaturrecherche zu den verfügbaren Softwarepaketen	19
2.5.1	Vorbemerkung	19
2.5.2	Alphaspektrometrie.....	19
2.5.3	LSC.....	20
2.5.4	Gammaspektrometrie	20
3	Bearbeitete Teilaufgaben in AP 2.....	21
3.1	Aufgabenstellung	21
3.2	Vorgehensweise.....	22
3.3	Beschreibung der ausgewählten Messszenarien.....	23
3.3.1	Alphaspektrometrie.....	23
3.3.2	LSC.....	24
3.3.3	Gammaspektrometrie	27
4	Bearbeitete Teilaufgaben in AP 3.....	29
4.1	Aufgabenstellung	29
4.2	Vorbemerkung.....	29
4.3	Alphaspektrometrie	29
4.3.1	Grundlagen und Modell der Auswertung	29
4.3.2	Szenario A01: Uran, mit Messeffekt	35
4.3.3	Szenario A02 und A03: Uran, mit Messeffekt, Variation zusätzlicher Unsicherheiten.....	37
4.3.4	Szenario A04: Uran, wenig Messeffekt.....	38
4.3.5	Szenario A05: Uran, mit Messeffekt, mit Blindwertabzug	39
4.3.6	Szenario A06: Uran, sehr geringer Messeffekt, mit Blindwertabzug	40
4.3.7	Szenario A07 und A08: Uran, unterschiedlich hoher Messeffekt, ohne Tracer ...	41
4.3.8	Szenario A09 und A10: Polonium, unterschiedlich hoher Messeffekt	42
4.3.9	Szenario A11 und A12: Polonium, mit Messeffekt, Peaküberlappung.....	42
4.3.10	Szenario A13 und A14: Plutonium, unterschiedlich hoher Messeffekt, isotopenreiner Tracer.....	45

4.3.11	Szenario A15: Plutonium, mit Messeffekt, Peaküberlappung, isotopenreiner Tracer	46
4.3.12	Szenario A16 und A17: Plutonium, mit Messeffekt, kontaminierter Tracer, Variation der Tracermenge	47
4.3.13	Szenario A18 und A19	48
4.3.14	Szenario A20: Radium-224, Untersuchung Abklingkorrektur	51
4.3.15	Prüfung von Manuals weiterer Software	52
4.3.16	Zusammenfassung	52
4.4	LSC	54
4.4.1	Vorbemerkung und Modell der Auswertung	54
4.4.2	Software PB2	54
4.4.2.1	Modell der Auswertung	54
4.4.2.2	Szenario B1 und B2: ein Nuklid (H-3), feste Roi, Messgeräteuntergrund, Messeffizienz aus Quenchkurve/TDCR, keine/geringe oder erhöhte Aktivität	55
4.4.3	Software PB1	57
4.4.3.1	Modell der Auswertung	57
4.4.3.2	Vorbemerkung zur Auswahl der Szenarien	57
4.4.3.3	Szenarien B1-B6 ein Nuklid (H-3), feste Roi, Messgeräteuntergrund, Messeffizienz aus Quenchkurve/TDCR, geringe oder erhöhte Aktivität, variable zusätzliche Unsicherheiten	58
4.4.3.4	Szenario B7 und B8 ein Nuklid (C-14), feste Roi, Messgeräteuntergrund, Messeffizienz aus Quenchkurve bzw. TDCR, geringe oder erhöhte Aktivität	61
4.4.3.5	Szenario B9 Cerenkovmessung (Sr-90/B-90), feste Roi, Messgeräteuntergrund, Messeffizienz aus TDCR, geringe oder erhöhte Aktivität	62
4.4.4	Zusammenfassung LSC	63
4.5	Gamma-spektrometrie	64
4.5.1	Modell der Auswertung	64
4.5.2	Vorbetrachtungen	67
4.5.3	Szenario 1: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt	70
4.5.4	Szenario 2: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit	71
4.5.5	Szenario 3: Mehrlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt	72
4.5.6	Szenario 4: Mehrlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur	73
4.5.7	Szenario 5: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, mit Nulleffekt	74
4.5.8	Szenario 7: Mehrlinienstrahler, Aktivität in einer Linie detektierbar, ohne Nulleffekt	75
4.5.9	Szenario 8: Einlinienstrahler, mit Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur	76
4.5.10	Szenario 9: Einlinienstrahler, mit Aktivität, ohne Nulleffekt	77
4.5.11	Szenario 10: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur, ohne zusätzliche Unsicherheit	78

4.5.12	Szenario 11: Mehrlinienstrahler, mit Aktivität, ohne Nulleffekt	79
4.5.13	Szenario 12: Mehrlinienstrahler, mit Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur.....	82
4.5.14	Szenario 13: Einlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, ohne Nulleffekt.....	83
4.5.15	Szenario 14: Einlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur.....	85
4.5.16	Szenario 6: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, im Multiplett, mit Nulleffekt.....	86
4.5.17	Szenario 15: Einlinienstrahler, mit Aktivität, mit Nulleffekt.....	90
4.5.18	Szenario 16: Einlinienstrahler, mit Aktivität, mit Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur	91
4.5.19	Szenario 17: Einlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, mit Nulleffekt.....	91
4.5.20	Szenario 18: Einlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, mit Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur.....	93
4.5.21	Szenario 19: Mehrlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, mit Nulleffekt.....	94
4.5.22	Szenario 20: Mehrlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, mit Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur.....	95
4.5.23	Zusammenfassung zu den untersuchten Programmen in der Gammaspektrometrie	96
4.5.24	Prüfung von Manuals weiterer Software.....	97
4.6	Vergleich der im Rahmen der Berechnung ermittelten Nachweisgrenzen mit den Anforderungen aus der RiPhyko Teil 2.....	99
5	Zusammenfassung	100
6	Literaturverzeichnis.....	105

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1	Kontaktierte Messstellen (Information bereitgestellt durch das BfS).....	15
Tabelle 2	Anforderungen an die Auswahl von Messszenarien entsprechend der Leistungsbeschreibung	21
Tabelle 3:	Bei den Szenarien verwendete Tracer	34
Tabelle 4:	Aufgenommene Messdaten für Szenario A01.....	35
Tabelle 5:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit $u(\text{BS})$, die Erkennungs- und Nachweisgrenze (EKG bzw. NWG) sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls (UG und OG) bei A01 für das Nuklid U-238.....	35
Tabelle 6:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennung- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls bei A01 für das Nuklid U-235.	36
Tabelle 7:	Darstellung des Untergrundabzugs bei PA2. Oben Rohdaten der Messung, unten Softwareausgabe ohne Patch.	37
Tabelle 8:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls bei den Szenarien A01, A02 und A03 für das Nuklid U-238.....	37
Tabelle 9:	Aufgenommene Messdaten für A04.....	38

Tabelle 10:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A04 für U-238, U-235 und U-234.	38
Tabelle 11:	Blindwerte für Szenario A05.	39
Tabelle 12:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennung- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A05 für U-238 und U-234.	40
Tabelle 13:	Blindwerte für Szenario A06.	40
Tabelle 14:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennung- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A06 für U-238 und U-234.	40
Tabelle 15:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A07 und A08 für U-238.	41
Tabelle 16:	Aufgenommene Messdaten für A09 und A10.	42
Tabelle 17:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A09 und A10 für Po-210.	42
Tabelle 18:	Aufgenommene Messdaten für A11 und A12.	43
Tabelle 19:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A11 und A12 für Po-210.	43
Tabelle 20:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A13 und A14 für Pu-238 und Pu-239/240.	45
Tabelle 21:	Aufgenommene Messdaten für A15.	46
Tabelle 22:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A15 für Pu-238 und Pu-239/240.	46
Tabelle 23:	Aufgenommene Messdaten für A16 und A17.	47
Tabelle 24:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A16 für Pu-238 und Pu-239/240.	47
Tabelle 25:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A17 für Pu-238.	48
Tabelle 26:	Aufgenommene Messdaten für A18 und A19.	48
Tabelle 27:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A18 für Th-232, Th-230 und Th-228.	48

Tabelle 28:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A19 für Th-232, Th-230 und Th-228.....	50
Tabelle 29:	Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, der Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie den Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A20 für Ra-224.....	51
Tabelle 30:	dT zum Erreichen von 1 % Unsicherheit bei der Abklingkorrektur für typische Radionuklide.	51
Tabelle 31:	Eingangsdaten und aufgenommene Messwerte für das LSC-Szenario B1 und B2 für PB2.	56
Tabelle 32:	Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B1 für H-3 für PB2, verglichen mit UncertRadio (UR) und einer eigenen Berechnung (EB).....	56
Tabelle 33:	Ermittelte Werte in Bq/l für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B2 für H-3 für PB2, verglichen mit UncertRadio (UR) und einer eigenen Berechnung (EB).....	56
Tabelle 34:	Eingangsdaten und aufgenommene Messwerte für die LSC-Szenarien B1 bis B6 für das Programm PB1.	58
Tabelle 35:	Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B1 für H-3 für PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR).....	59
Tabelle 36:	Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B3 – B5 für die low-Probe H-3 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR).....	59
Tabelle 37:	Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B3 – B5 für die high-Probe H-3 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR).....	60
Tabelle 38:	Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B6 für die low- und high-Proben H-3 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR).....	60
Tabelle 39:	Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B7 und B8 für die low- und high-Proben C-14 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR).....	61

Tabelle 40:	Eingangsdaten und aufgenommene Messwerte für das LSC-Szenario B9 für das Programm PB1.	62
Tabelle 41:	Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B9 für die low- und high-Proben Sr-90 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR).....	63
Tabelle 42:	Spektrum_1, Auswertung Genie-2000	67
Tabelle 43:	Spektrum_1, Auswertung APEX-Gamma.....	67
Tabelle 44:	Spektrum_2, Auswertung Genie-2000	68
Tabelle 45:	Spektrum_2, Auswertung APEX-Gamma.....	68
Tabelle 46:	Szenario Gamma 1: Die EKG und NWG wurden für Cs-137 berechnet, in einem Spektrum ohne Aktivität und ohne Nulleffekt. PG1 (oben) und PG2 (unten) verwenden für den Fall eines nicht vorhandenen Peaks unterschiedliche Berechnungsgrundlagen, die in diesem Fall zu deutlich unterschiedlichen Grenzen führen. Daher werden die Programme separat verglichen, als Referenz dienen jeweils die an die Berechnungsart angepassten EB.....	71
Tabelle 47:	Szenario Gamma 2: Berechnung der Cs-137 EKG und NWG für PG1 (oben) und PG2 (unten) unter Berücksichtigung einer Zerfallskorrektur und zusätzlicher Messunsicherheiten (MU). Das Bezugsdatum liegt ca. eine Halbwertszeit (30,018 a) vor dem Messdatum. Als Referenz werden die EB verwendet.	72
Tabelle 48:	Szenario Gamma 3: Die EKG und NWG wurden für den Mehrlinienstrahler Co-60 berechnet. Exemplarisch wurden hier sowohl die einzelnen Linien als auch die angegebenen Grenzen des Nuklids betrachtet. Während PG1 (links) die kleinsten Linien-EKG und NWG für das gesamte Nuklid verwendet, gibt PG2 (rechts) die Grenzen der in der Bibliothek zuerst gelisteten (Schlüssel-) Linie an.	73
Tabelle 49:	Szenario Gamma 4: Co-60 EKG und NWG ohne Aktivität, unter Berücksichtigung einer Zerfallskorrektur und zusätzlicher Messunsicherheiten von 25 %. Das Bezugsdatum liegt ca. 8 a (Halbwertszeit = 5,271 a) vor dem Messdatum.	74
Tabelle 50:	Szenario Gamma 5: Vergleich von Auswertungen mit und ohne Nulleffektabzug. Ohne Abzug stimmen sowohl PG1 als auch PG2 gut mit EB/UR überein. Wird ein Abzug durchgeführt, liegt für PG1 weiterhin gute Übereinstimmung vor, PG2 weicht jedoch deutlich (ca. 8 %) ab.....	74
Tabelle 51:	Szenario Gamma 7: Für den Mehrlinienstrahler Co-60 konnte nur eine Linie, bei 1173 keV, identifiziert werden. Für PG1 und PG2 liegt eine gute Übereinstimmung mit EB und UR vor. Beide Programme übernehmen korrekt die Werte der 1173-keV-Linie für das Nuklid.	75
Tabelle 52:	Gamma Szenario 8: Cs-137 charakteristische Größen im Vergleich von PG1 (obere Hälfte) und PG2 (untere Hälfte) mit EB und UR. Das Bezugsdatum liegt ca. eine Halbwertszeit (30,018 a) vor dem Messdatum.....	76

Tabelle 53:	Gamma Szenario 9-1: Charakteristische Größen für Cs-137 ohne zusätzliche Messunsicherheit im Vergleich zu EB und UR: oben: PG1; unten: PG2.....	77
Tabelle 54:	Gamma Szenario 9-2: Charakteristische Größen für Cs-137 mit 25 % zusätzlicher Messunsicherheit im Vergleich zu EB und UR: oben: PG1; unten: PG2.....	77
Tabelle 55:	Szenario Gamma 10: EKG und NWG der 1173-keV-Linie von Co-60 unter Berücksichtigung ausschließlich einer Zerfallskorrektur. Zur exemplarischen Darstellung des Einflusses der Unsicherheit der Halbwertszeit ($\lambda_{(TH)}$) wurde diese erhöht, sodass sie 10 % zur Unsicherheit der Aktivität beitragen würde. Als Vergleichsreferenz dient EB mit normalem bzw. erhöhtem $\lambda_{(TH)}$ Wert. Das Bezugsdatum liegt ca. 10 a (Halbwertszeit = 5,271 a) vor dem Messdatum.....	78
Tabelle 56:	Gamma Szenario 11-1: Gegenüberstellung von PG1 mit EB und UR. Zur Berechnung der Einzellinien wurden die Peakbereiche aus PG1 verwendet. Die Mittelung wurde für EB sowohl nach der Methode der kleinsten Quadrate (MKQ) (unter Annahme einer Korrelation von 90 % zwischen den Nachweiseffizienzen der Linien) als auch nach der Methode von PG1 durchgeführt. Die Ergebnisse von PG1 lassen sich so reproduzieren, weichen aber für die Messunsicherheit und die Grenzen des Überdeckungsintervalls von MKQ ab.	81
Tabelle 57:	Szenario Gamma 11-2: Gegenüberstellung von PG2 mit EB und UR. Zur Berechnung der Einzellinien wurden die Peakbereiche aus PG2 verwendet. Die Mittelung wurde für EB sowohl nach MKQ (unter Annahme einer Korrelation von 90 % zwischen den Nachweiseffizienzen der Linien) als auch nach der Methode von PG2 durchgeführt. Die Ergebnisse von PG2 lassen sich so reproduzieren. Die angegebenen Unsicherheiten sind jedoch überschätzt.	81
Tabelle 58:	Szenario Gamma 12: Vergleich von EB, UR, PG1 und PG2 für den Mehrlinienstrahler Co-60. Aufgrund der hohen zusätzlichen Unsicherheit sind die leichte Unter- (PG1) bzw. Überschätzung (PG2) der Messunsicherheit bei der Mittelung der Linienaktivitäten vernachlässigbar. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a (Halbwertszeit = 5,271 a) vor dem Messdatum.....	82
Tabelle 59:	Szenario Gamma 13-1: Eu-152 und Eu-154 werden als Einlinienstrahler behandelt, indem in der Nuklidbibliothek alle Linien außer die 121,8-keV-Linie (Eu-152) und die 123,1-keV-Linie (Eu-154) aus der Mittelwertbildung ausgeschlossen werden. In PG1 wird dennoch die 1408-keV-Linie für die nuklidbezogenen EKG und NWG verwendet. Für alle anderen charakteristischen Größen liegt eine sehr gute Übereinstimmung zwischen PG1 und EB sowie UR vor.	84
Tabelle 60:	Szenario Gamma 13-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die als Einlinienstrahler behandelten Nuklide Eu-152 und Eu-154. In PG2 werden EKG und NWG deutlich überschätzt, für alle anderen Werte liegt eine sehr gute Übereinstimmung vor.	84

Tabelle 61:	Szenario Gamma 14-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 =13,522, Eu-154 = 8,601 a).	85
Tabelle 62:	Szenario Gamma 14-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 =13,522, Eu-154 = 8,601 a).	85
Tabelle 63:	Szenario Gamma 6-1: Vergleich von PG1 mit den Berechnungen in EB und UR für Eu-152 als Einlinienstrahler im Multiplett. Betrachtet werden die Fälle eines vorhandenen Netto-Peaks, eines Peaks der dem Nulleffekt entspricht und der Nicht-Identifikation von Eu-154. Da EB und UR exakt übereinstimmen sind nur die Abweichungen nur zwischen PG1 und EB aufgelistet.	87
Tabelle 64:	Szenario Gamma 6-2: Vergleich von PG1 mit EB und UR für Eu-154 als Einlinienstrahler im Multiplett. Betrachtet werden die Fälle eines vorhandenen Netto-Peaks, eines Peaks der dem Nulleffekt entspricht und der Nicht-Identifikation von Eu-154. Da EB und UR exakt übereinstimmen sind nur die Abweichungen nur zwischen PG1 und EB aufgelistet.	87
Tabelle 65:	Szenario Gamma 6-3: Vergleich von PG2 mit den Berechnungen in EB und UR für Eu-152 als Einlinienstrahler im Multiplett. Betrachtet werden die Fälle eines vorhandenen Netto-Peaks, eines Peaks der dem Nulleffekt entspricht und der Nicht-Identifikation von Eu-154. Da EB und UR exakt übereinstimmen sind nur die Abweichungen nur zwischen PG1 und EB aufgelistet.	89
Tabelle 66:	Szenario Gamma 6-4: Vergleich von PG1 mit EB und UR für Eu-154 als Einlinienstrahler im Multiplett. Betrachtet werden die Fälle eines vorhandenen Netto-Peaks, eines Peaks der dem Nulleffekt entspricht und der Nicht-Identifikation von Eu-154. Die Werte der EB für den Fall, dass Eu-154 nicht identifiziert wurde berücksichtigen nicht den Eu-152 Störpeak und dienen nur zum Vergleich, nicht als Referenz. Sie stehen deshalb in Klammern. Da EB und UR exakt übereinstimmen sind nur die Abweichungen nur zwischen PG1 und EB aufgelistet.	89
Tabelle 67:	Szenario Gamma 15: Der Einlinienstrahler Cs-137 wurde mit Nulleffekt-Abzug ausgewertet und für die Programme PG1 (oben) und PG2 (unten) jeweils separat mit EB und UR verglichen. Zum Vergleich ist für PG2 auch eine Auswertung ohne Nulleffekt aufgelistet.	90
Tabelle 68:	Szenario Gamma 16: Vergleich von PG1 (oben) und PG2 (unten) mit EB und UR für einen Einlinienstrahler mit Nulleffektabzug, Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit. Das Bezugsdatum liegt ca. eine Halbwertszeit (30,018 a) vor dem Messdatum.	91
Tabelle 69:	Szenario Gamma 17-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR für die Hauptlinien von Eu-152 und Eu-154. Es wird für alle Größen eine sehr gute Übereinstimmung erzielt.	92
Tabelle 70:	Szenario Gamma 17-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die Hauptlinien von Eu-152 und Eu-154. Abweichungen liegen nur für EKG und NWG vor.	92

Tabelle 71:	Szenario Gamma 18-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR für die Hauptlinien von Eu-152 und Eu-154. Es wird für alle Größen eine sehr gute Übereinstimmung erzielt. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 =13,522, Eu-154 = 8,601 a).	93
Tabelle 72:	Szenario Gamma 18-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die Hauptlinien von Eu-152 und Eu-154. Abweichungen liegen nur für EKG und NWG vor. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 =13,522, Eu-154 = 8,601 a).....	93
Tabelle 73:	Szenario Gamma 19-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR für die Mehrlinienstrahler Eu-152 und Eu-154 in Multipletts, mit Nulleffektkorrektur.	94
Tabelle 74:	Szenario Gamma 19-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die Mehrlinienstrahler Eu-152 und Eu-154 in Multipletts, mit Nulleffektkorrektur.	95
Tabelle 75:	Szenario Gamma 20-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR für die Mehrlinienstrahler Eu-152 und Eu-154 in Multipletts, mit Nulleffekt- und Zerfallskorrektur. Das Bezugsdatum liegt ca. 8 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 =13,522, Eu-154 = 8,601 a).	96
Tabelle 76:	Szenario Gamma 20-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die Mehrlinienstrahler Eu-152 und Eu-154 in Multipletts, mit Nulleffekt- und Zerfallskorrektur. Das Bezugsdatum liegt ca. 8 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 =13,522, Eu-154 = 8,601 a).....	96
Tabelle 77:	Vergleich der Nachweisgrenzen aus den repräsentativen Messszenarien mit den praktischen Nachweisgrenzen aus Anhang 3.1 der Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosen Teil 2	99

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Messgeräte für LSC-Messungen.....	17
Abbildung 2:	Aufgenommenes Spektrum bei Szenario A11 mit dem manuellen Fit (rot) und den Einzelkomponentenspektren (grün und blau).	43
Abbildung 3:	Fit des Spektrums von Szenario A12 mit dem automatischen Programm (links) und der Software PA1 (rechts).....	45
Abbildung 4:	Spektrum für Szenario A19 (links) und ein Referenzspektrum (rechts) mit den rot markierten ROIs der einzelnen Nuklide.....	50

Anlagenverzeichnis (alle Anlagen in elektronischer Form)

Anlage 1	Fragebogen als Gesprächsgrundlage der Recherchen in AP 1
Anlage 2	Ergebnisse der Rückmeldungen und Gespräche mit den Messstellen in AP 1

Zusammenfassung

Die charakteristischen Grenzen von Methoden der Kernstrahlungsmessung gemäß DIN EN ISO 11929 (Erkennungs- und Nachweisgrenze, Grenzen des Überdeckungsintervalls) sind eine bedeutende Information dafür, die Eignung einer Methode und die Zuverlässigkeit der Messergebnisse für die jeweilige Aufgabenstellung zu bewerten. Für die verschiedenen Anwender*innen von Computer-Software zur Auswertung ist es daher wichtig zu wissen, inwieweit sie sich auf die berechneten Werte der charakteristischen Grenzen verlassen können und ob sie vergleichbare und valide Ergebnisse liefern. Im Rahmen dieses Vorhabens wurde die Berechnung der charakteristischen Grenzen in Computerprogrammen, die für die Auswertung von Inkorporationsmessungen in Deutschland am meisten verwendet werden, überprüft. Die Ergebnisse der Softwareprodukte wurden dabei mit denen der vom Thünen-Institut entwickelten Software UncertRadio sowie einer eigenen Berechnung nach DIN EN ISO 11929 verglichen. Betrachtet wurden die Messverfahren Alphaspektrometrie, Flüssigszintillationsspektrometrie und Gammaskpektrometrie. Je Verfahren wurden UncertRadio und zwei unterschiedliche Produkte je Methode in diesem Vorhaben untersucht. Für jedes Verfahren wurden dafür bis zu 20 verschiedene realistische Messszenarien formuliert. Diese Szenarien deckten sowohl einfache (z. B. einzelne, getrennte Peaks im Spektrum) als auch komplexe Messaufgaben (z. B. Peaküberlappungen bzw. Multipletts und kontaminierter Spike) ab. Darüber hinaus wurden alle relevanten Unsicherheitsbeiträge berücksichtigt und variiert. Es stellte sich heraus, dass die untersuchten Programme sowie UncertRadio die charakteristischen Grenzen im Wesentlichen konform zu DIN EN ISO 11929 berechneten. Allerdings wurden bei allen Methoden speziellere Szenarien identifiziert, bei denen es durchaus zu bedeutenden Abweichungen kommt. Die Ergebnisse dieses Vorhabens können den Softwareherstellern zur Verbesserung ihrer Produkte dienen und darüber hinaus einen Beitrag zur deutschlandweit einheitlichen Berechnung von Messergebnissen von Personen- und Ringversuchsmessungen in der Inkorporationsüberwachung leisten, wie sie in einer neuen „Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosen Teil 2“ (Riphyko) unter Berücksichtigung der DIN EN ISO 11929 vorgesehen sein könnte.

Summary

The characteristic limits of nuclear measurement methods according to DIN EN ISO 11929 (decision threshold, detection limit and limits of the coverage interval) are important for assessing the suitability of a method and the reliability of the measurement results for the respective task. It is therefore important for the various users of analysis software to know to what extent they can rely on the calculated values of the characteristic limits and whether they provide comparable and valid results. In this project, the calculation of the characteristic limits in computer software, which is most commonly used for the evaluation of incorporation measurements in Germany, was investigated. The results of the software products were compared with those of the UncertRadio evaluation software developed by the Thünen Institute and with our own calculation according to DIN EN ISO 11929. The investigated measurement methods were alpha spectrometry, liquid scintillation spectrometry and gamma spectrometry. UncertRadio and two different products per method were analysed in this project. Up to 20 different realistic measurement scenarios were developed for each method. These scenarios covered both simple (e.g. single, separate peaks in the spectrum) and complex measurement tasks (e.g. peak overlaps or multiplets and contaminated spike). In addition, all relevant uncertainty contributions were taken into account and varied. It turned out that the analysed programmes and UncertRadio

essentially calculated the characteristic limits in accordance with DIN EN ISO 11929. However, more specialised scenarios were identified for all methods, in which significant deviations did occur. The results of this project can be used by software developers to improve their products and also contribute to the standardised calculation of measurement results from personal and interlaboratory measurements in incorporation monitoring throughout Germany, as could be envisaged in a new guideline for physical radiation protection monitoring to determine body doses, Part 2 (Riphyko), taking into account DIN EN ISO 11929.

1 Einleitung

Gegenstand des bearbeiteten Forschungsvorhabens ist entsprechend der Leistungsbeschreibung des BfS [1] die Überprüfung der korrekten Berechnung der charakteristischen Grenzen

- Erkennungsgrenze
- Nachweisgrenze und
- Grenzen des Überdeckungsintervalls

für den Bereich der Inkorporationsüberwachung für die Messverfahren

- Alphaspektrometrie,
- Gammaspektrometrie und
- Flüssigszintillationszählung

Hierbei soll die Berechnung der charakteristischen Grenzen der Aktivität gemäß der Normenreihe DIN EN ISO 11929 (mit den einzelnen Teilen DIN EN ISO 11929-1:2021-11, DIN EN ISO 11929-2:2021-11, DIN EN ISO 11929-3:2021-11 und DIN EN ISO 11929-4:2021-06) überprüft werden, für jeweils bis zu drei Software-Pakete bei einer Reihe von Messszenarien, die für die Inkorporationsüberwachung mit In-vivo- und In-vitro-Methoden typisch sind. Die Anwendung der DIN EN ISO 11929 ist ein wesentlicher Bestandteil von Aktivitätsmessungen in allen Probenmatrices über die Inkorporationsüberwachung hinaus (siehe z. B. [2]).

Ziel des Vorhabens ist die Überprüfung der Berechnung der drei genannten Arten charakteristischer Grenzen in Computer-Software, die für die Auswertung von Inkorporationsmessungen mit den drei genannten Messverfahren in Deutschland am meisten verwendet wird. Dafür sollen verschiedene Messszenarien mit realen oder simulierten Spektren entwickelt werden, in die die einzelnen Beiträge zur Unsicherheit in unterschiedlichem Umfang eingehen.

Die charakteristischen Grenzen werden beeinflusst durch die Beiträge zur Unsicherheit, die gemäß ISO/IEC Guide 98-3 („Guide to the expression of uncertainty in measurement“ [3]) in Unsicherheiten vom Typ A (Unsicherheiten, die aus statistischen Verteilungen gewonnen werden) und Unsicherheiten vom Typ B (sonstige Unsicherheiten) unterschieden werden.

Die Ergebnisse der von der Software ausgegebenen Werte sollen mit vom Auftragnehmer selbst berechneten Werten verglichen und die Güte der Übereinstimmung bewertet werden.

Ein Vergleich mit den Ergebnissen der Software UncertRadio soll ebenfalls erfolgen. Auf diese Weise soll nachgewiesen werden, ob sich Anwender*innen dieser Computer-Software sowie der Software UncertRadio auf die berechneten Werte der charakteristischen Grenzen verlassen können. Das soll auch zur deutschlandweit einheitlichen Berechnung von Messergebnissen von Personen- und Ringversuchsmessungen in der Inkorporationsüberwachung beitragen, wie sie in einer neuen Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosen Teil 2 unter Berücksichtigung der DIN EN ISO 11929 vorgesehen sein könnte.

Die Bearbeitung ist entsprechend der Zielstellung in drei separate, aufeinander aufbauende Arbeitspakete (AP) gegliedert:

- AP 1: Marktrecherche bezüglich der Verbreitung der Software-Pakete in Deutschland,
- AP 2: Entwicklung der zu untersuchenden Messszenarien,
- AP 3: Überprüfung der Berechnung.

Im vorliegenden Abschlussbericht werden die Ergebnisse der Untersuchungen dargestellt.

2 Bearbeitete Teilaufgaben in AP 1

2.1 Aufgabenstellung

Aufgabenstellung AP 1 gemäß der Leistungsbeschreibung [1]

In einem ersten Bearbeitungsschritt ist festzustellen, welche Software in den Inkorporationsmessstellen in Deutschland für die genannten Methoden eingesetzt wird. Dabei sind alle behördlich bestimmten und ausreichend viele betriebliche Messstellen zu berücksichtigen. Es ist nicht erforderlich, alle betrieblichen Inkorporationsmessstellen abzufragen. Das Ergebnis der Abfrage soll aber auch für diese Messstellen repräsentativ sein.

Für die folgenden Arbeitspakete sind für jede Methode die drei am häufigsten eingesetzten Software-Pakete (außer selbst geschriebene Software und außer UncertRadio) zu identifizieren. Software, die lediglich verschiedene Benutzeroberflächen besitzt, aber identische Auswerterroutinen verwendet, ist dabei als eine Art von Software zusammenzufassen. Auch verschiedene Versionen von Software desselben Herstellers sind zusammenzufassen. Software-Pakete, die keine Berechnung der charakteristischen Grenzen gemäß DIN EN ISO 11929 bieten, sind zu streichen und durch das nächsthäufig eingesetzte Software-Paket zu ersetzen. Wenn für eine Methode weniger als drei Software-Pakete verbleiben, wird der Auftraggeber mit dem Auftragnehmer Alternativen besprechen (zum Beispiel die Überprüfung von Software, die in anderen Arten von Radioaktivitätsmessstellen im Einsatz ist); gegebenenfalls kann die Anzahl für diese Methode ohne Ausgleich bei anderen Methoden reduziert werden. Etwaige Angaben der Hersteller der Software, dass die Software bereits extern validiert wurde, sind ebenfalls zu erfassen. Das Ergebnis dieser Recherche sowie die Vorgehensweise ist dem Auftraggeber als Teil des Zwischenberichts mitzuteilen. Die Anwendung des Ergebnisses der Recherche für den weiteren Verlauf des Vorhabens ist mit ihm abzustimmen.

Anhand der Benutzerdokumentationen dieser Software sind etwaige Unterschiede in der Berechnung der charakteristischen Grenzen und Abweichungen von der in DIN EN ISO 11929 festgelegten Berechnung (z. B. Vereinfachungen) zu identifizieren. Diese Untersuchung ist auch für die Software UncertRadio durchzuführen. In den Zwischenbericht ist außerdem eine Einschätzung der grundsätzlichen Verbreitung der Anwendung der DIN EN ISO 11929 in den drei genannten Messmethoden aufzunehmen.

Es erscheint sinnvoll, in diesem Arbeitsschritt bereits abzufragen, welche Inkorporationsmessstellen dazu bereit sind, ihre Software-Installationen für die spätere Auswertung zur Verfügung zu stellen.

2.2 Kontaktierung der Inkorporationsmessstellen

Auf der Website des BfS¹ ist eine aktuelle Liste aller behördlich bestimmten Inkorporationsmessstellen verfügbar. Darin sind neben den zwei Messstellen des BfS insgesamt 20 Stellen jeweils mit Kontaktdaten aufgelistet, die in Tabelle 1 wiedergegeben sind.

¹ <https://www.bfs.de/DE/themen/ion/service/inkorporation/messstellen/messstellen.html>

Tabelle 1 Kontaktierte Messstellen (Information bereitgestellt durch das BfS)

Kennung	Inkorporationsmessstelle	Überwachung
BE02	Bundesamt für Strahlenschutz Dienstszitz Berlin	In-vivo und in-vitro
BW01	Karlsruher Institut für Technologie (KIT) SUM In-vivo-Messlabor	In-vivo
BW02	Karlsruher Institut für Technologie (KIT) Medizinische Dienste, Toxikologisches Labor (MED-TOX)	In-vitro
BW05	Eberhard-Karls-Universität Tübingen Isotopenlabor und Strahlenschutz	In-vitro
BY01	Bayerisches Landesamt für Umwelt Dienststelle Kulmbach, Messstelle für Radiotoxikologie	In-vitro
BY02	Bundesamt für Strahlenschutz Dienstszitz Oberschleißheim	In-vivo
BY03	Framatome GmbH Inkorporationsmessstelle – Ausscheidungsanalytik	In-vitro
BY04	Framatome GmbH Inkorporationsmessstelle - Bodycounter	In-vivo
BY05	Universitätsklinikum Würzburg Klinik und Poliklinik für Nuklearmedizin	In-vivo
HE02	Justus-Liebig-Universität Gießen Dezernat B 3.5 / Zentrale Strahlenschutzgruppe	In-vivo
HH02	Universitätsklinikum Hamburg-Eppendorf (UKE) Klinik für Nuklearmedizin	In-vivo
NI01	Medizinische Hochschule Hannover Stabsstelle Strahlenschutz und Abteilung Medizinische Physik/Inkorporationsmessstelle	In-vivo und in-vitro
NW01	Universitätsklinikum Essen Klinik und Poliklinik für Nuklearmedizin	In-vivo
NW02	Landesinstitut für Arbeitsgestaltung Inkorporationsmessstelle	In-vivo und in-vitro
NW04	Forschungszentrum Jülich Geschäftsbereich Sicherheit und Strahlenschutz	In-vivo und in-vitro
NW05	Universitätsklinikum Münster Klinik für Nuklearmedizin Ganzkörperzähler	In-vivo
NW06	Bayer AG/ Pharmaceuticals Radiation Protection	In-vitro

Kennung	Inkorporationsmessstelle	Überwachung
RP01	Johannes-Gutenberg-Universität Mainz Klinik und Poliklinik für Nuklearmedizin	In-vivo
SH01	PreussenElektra GmbH Messstelle für Inkorporationsüberwachung, Brokdorf	In-vivo
SH02	Kernkraftwerk Krümmel GmbH Messstelle Inkorporationsüberwachung	In-vivo
SH03	Universitätsklinikum Schleswig-Holstein Campus Kiel Abteilung Medizinische Physik – Ganzkörperzähler	In-vivo
SN01	VKTA-Strahlenschutz, Analytik & Entsorgung Rossendorf e.V. Abteilung KSI, Inkorporationsmessstelle	In-vivo und in-vitro

Durch den Auftragnehmer wurde ein einfach gehaltener Fragebogen entwickelt, der zunächst mit dem Arbeitskreis Inkorporationsüberwachung (AKI) des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V. vorbesprochen und danach an die Ansprechpartner der Messstellen als Gesprächsgrundlage versandt wurde. Der Fragebogen (Stand 27.01.2023) ist in Anlage 1 beigefügt. Bei der zumeist telefonisch erfolgten Kontaktaufnahme wurden die Fragen beantwortet und ggf. präzisierende Nachfragen bearbeitet. Im Verlauf der ersten Gespräche mit den Messstellen wurden die Fragen noch geringfügig modifiziert. Die überarbeitete Version des Fragebogens (Stand 31.01.2023) ist ebenfalls in Anlage 1 enthalten.

Von den 22 oben gelisteten und befragten Institutionen haben wir von 19 eine ausführliche Rückmeldung erhalten. Die Rücklaufquote beträgt somit ca. 86 %. Aufgrund der hohen Rücklaufquote kann davon ausgegangen werden, dass die Ergebnisse repräsentativ sind. Die Ergebnisse der Recherche sind in Anlage 2 für jede Messstelle zusammengestellt. Sie lassen sich unter dem Gesichtspunkt der Zielstellung des Vorhabens, insbesondere der Entwicklung von Szenarien unter AP 2, wie folgt zusammenfassen:

Alphaspektrometrie:

Sechs Institutionen gaben an Alphaspektrometrie zu nutzen. Zu bestimmende Nuklide sind in der Ausscheidungsanalyse Po-210, Th-Isotope, U-Isotope, Am-241 und die Pu-Isotope.

LSC:

An neun Institutionen werden Flüssigszintillationsmessungen durchgeführt. Am häufigsten sind H-3 und C-14 in Urin zu bestimmen. In Ringversuchen werden zudem auch P-32 und Sr-90 in Urin bestimmt. Außerdem nutzen wenige Institutionen LSC auch zur Gesamt-Alpha Bestimmung in Urin.

Gammaskpektrometrie:

15 Institutionen führen Gammamessungen mit einem Ganz- und/oder Teilkörperzähler durch. Bei den Ganzkörpermessungen sind u. a. folgende Nuklide Na-22, Mn-54, Co-60, Ge-68 (Ga-68), Ba-133, Cs-137, Eu-152, Lu-177 und Am-241 zu bestimmen. Beim Teilkörperzähler wurden zusätzlich meist die Iod-Isotope (I-125, I-129 und I-131) und Ba-133 genannt.

Sehr viele Messstellen haben ihre Bereitschaft signalisiert, ihre Software-Installationen für die spätere Auswertung zur Verfügung zu stellen. Zu diesen zählen unter anderen:

- BE02: Bundesamt für Strahlenschutz, Dienststelle Berlin
- BW02: Karlsruher Institut für Technologie (KIT) in-vitro MED-TOX
- BY01: Bayerisches Landesamt für Umwelt, Dienststelle Kulmbach
- NW04: Forschungszentrum Jülich

2.3 Identifizierung der am meisten verbreiteten Software

Alphaspektrometrie:

Für die Aufnahme der Spektren setzen jeweils drei Institutionen InterWinner bzw. Genie 2000 Alpha ein. Für die Auswertung nutzen hingegen drei Institutionen InterWinner, eine Genie 2000 Alpha (bzw. Apex Alpha) und zwei nutzen Excelrechenblätter. Sowohl InterWinner als auch Genie 2000 Alpha unterstützen eine Auswertung gemäß DIN EN ISO 11929. Da das Programmpaket Apex Alpha auf Genie Alpha aufbaut, ist an dieser Stelle keine separate Betrachtung erforderlich. Davon unbenommen soll aber geprüft werden, ob die getroffenen Eingaben bei Apex und Genie jeweils korrekt übernommen werden.

LSC:

Bei den Flüssigszintillationsmessungen wird in der Regel durch das verwendete Messgerät die Software zur Datenaufnahme festgelegt. Eine kommerzielle Software zur Auswertung der Daten, die unabhängig vom eingesetzten Messgerät benutzt werden kann, wird weder eingesetzt noch ist dem Auftragnehmer eine solche bekannt. Es ist daher zweckmäßig, zuerst einen Überblick über die vorhandenen Messgeräte aufzustellen. Mehrere Institutionen gaben an, über mehrere, verschiedene Geräte zu verfügen. Die Abbildung 1 zeigt die verwendeten Messgeräte:

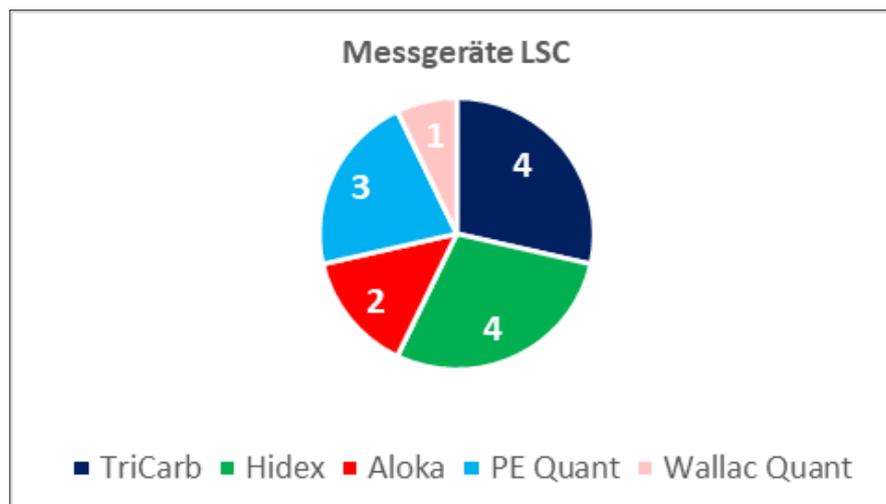


Abbildung 1: Messgeräte für LSC-Messungen.

Die eingesetzte Gerätesoftware ist mit Ausnahme der Software der Hidex-Geräte nicht in der Lage, kompliziertere Auswertungen wie die Berechnung von Erkennungs- und Nachweisgrenzen durchzuführen. Vom Hersteller PerkinElmer wird ein Excel-Auswertblatt angeboten, mit dem für Einzelnuclidbestimmungen die Berechnungen der charakteristi-

schen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 durchgeführt werden können. Problematisch ist bei LSC-Messungen die gleichzeitige Bestimmung zweier Nuklide wie beispielsweise H-3 und C-14 oder Sr-89 und Sr-90 (Y-90). Die Software MikroWin (Hidex-Geräte) soll in einer zukünftigen Version dazu in der Lage sein.

Für die Datenauswertung nutzt nur eine Institution MikroWin. Eine Institution gab an, zwar über das Excel-Auswertebrett von PerkinElmer zu verfügen, es aber wegen mangelnder Praktikabilität nicht einzusetzen. Alle anderen verwenden die Messgerätesoftware lediglich, um die Zählraten im Messfenster zu bestimmen und diese gegebenenfalls über eine Quenchkurve in Aktivität umzurechnen. Diese Zählraten werden dann in einer geeigneten Tabellenkalkulationssoftware weiterverarbeitet und die entsprechenden Berechnungen der charakteristischen Grenzen vorgenommen.

Gammaspektrometrie:

10 Institutionen verwenden Apex-InVivo, Apex-Gamma oder Genie 2000 (67 %) für die Auswertung. Eine Institution nutzt GammaVision (7 %) für die Auswertung. Die vier übrigen Institutionen (27 %) setzen eigene Software oder Excel für die Auswertung ein. Die kommerziellen Softwareprodukte Genie 2000 und GammaVision unterstützen eine Auswertung nach DIN EN ISO 11929. Da die Programmpakete Apex-InVivo und Apex auf Genie 2000 aufbauen, ist an dieser Stelle keine separate Betrachtung erforderlich.

2.4 Auswahl der im Vorhaben zu untersuchenden Softwarepakete

Zur Auswahl der bei der weiteren Vorhabensbearbeitung zu untersuchenden Softwarepakete fanden folgende Kriterien Berücksichtigung:

- Grad der Verbreitung der Software in den Inkorporationsmessstellen,
- Leistungsfähigkeit der Software, Berechnung von charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 für mögliche zu untersuchende Szenarien durchzuführen, z. B. bei Peaküberlagerungen,
- Möglichkeit der Integration benutzerspezifischer Unsicherheits-Parameter,
- Benutzerfreundlichkeit der Softwarepakete, z. B. im Sinne des Ergebnisexports für die Prüfberichterstellung.

Der Umstand, dass in den Inkorporationsmessstellen nur eine sehr begrenzte Anzahl verschiedener Softwareprodukte zum Einsatz kommt, war an dieser Stelle bestimmend für die unter diesen Gesichtspunkten getroffene Auswahl:

Alphaspektrometrie:

- Genie 2000 Alpha bzw. Apex Alpha (Mirion Technologies)
- InterWinner (TIK)

LSC:

- MikroWin (Hidex)
- Excel-Makro zur Quantasart Software (Perkin Elmer)

Gammaskpektrometrie:

- Genie 2000 bzw. Apex-InVivo /Apex (Mirion Technologies)
- GammaVision (AMETEK ORTEC)

Zusätzlich wird gemäß Leistungsbeschreibung auch die Software UncertRadio betrachtet.

Es verbleiben daher sowohl für Alpha- und Gammaskpektrometrie als auch LSC nur zwei Softwarepakete für die weitere Untersuchung. Diese Zahl ist geringer als die zunächst angedachte Anzahl von drei Softwarepaketen. Es wurde daher mit dem Auftraggeber gemäß Leistungsbeschreibung als alternative Leistung vereinbart, weitere Softwareprodukte anhand der Manuals darauf zu untersuchen ob sie a) nach DIN EN ISO 11929 auswerten und b) ob eine sinnvolle Kennzahlen-Berechnung implementiert ist.

2.5 Literaturrecherche zu den verfügbaren Softwarepaketen

2.5.1 Vorbemerkung

Anhand der Benutzerdokumentation der ausgewählten kommerziellen Softwarepakete war zu prüfen, ob etwaige Unterschiede in der Berechnung der charakteristischen Grenzen und Abweichungen (z. B. Vereinfachungen) von den in DIN EN ISO 11929 festgelegten Berechnungen identifiziert werden können.

Hierzu wurden entsprechende verfügbare Dokumente gesichtet und ausgewertet. Dies waren zumeist die Manuals bzw. Handbücher, welche häufig Abschnitte enthalten, in denen die in der Software durchgeführten Berechnungen erläutert werden, darunter u. a. die Berechnung der charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929. Ergänzend wurden weitere Dokumente wie Application Notes oder sonstige Berichte gesichtet. Abweichungen zur DIN EN ISO 11929 konnten nicht festgestellt werden, wobei die Dokumentation der Software-Pakete nur einen Teil der verwendeten mathematischen Formeln offenlegt.

Zusätzlich war eine Recherche über veröffentlichte Software-Validierungen gefordert. Der Auftragnehmer konnte keine frei verfügbaren Angaben zu *externen* (bzw. unabhängigen) Validierungen der Berechnungen der charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 für die zu untersuchenden Software-Pakete auffinden. Dies ist insofern verständlich, da eine (partielle) externe Validierung nahezu ausschließlich im Rahmen der Begutachtung des Anwenders der Software stattfindet, dies kann z. B. ein Akkreditierungsverfahren in einem radiochemischen Labor oder eine Inbetriebnahmeprüfung beim Einsatz in Kernkraftwerken sein, wie von einigen Anwendern und Softwareherstellern bestätigt wurde.

Die Software UncertRadio [4] ist ebenfalls zu untersuchen. Sie ist in der Lage, Messszenarien für verschiedene Methoden abzubilden, wobei die Szenarien auch komplexerer Natur sein können. Es existiert eine umfangreiche Online-Dokumentation innerhalb der Software, welche die verwendeten Formeln anhand realer Messszenarien darlegt. Darüber hinaus gibt es zwei Artikel des Autors G. Kanisch, in denen die Einsatzmöglichkeiten beschrieben werden [5, 6]. Nach [5] sind die Berechnungen mit vielen verfügbaren Datensätzen geprüft worden, wobei nachgewiesen wurde, dass die Software auf zwei oder mehr signifikante Stellen genau rechnet.

2.5.2 Alphaspektrometrie

Für die Software Genie 2000 Alpha bzw. Apex Alpha (Mirion Technologies) wurde das Manual ausgewertet [7]. Zudem liegt ein Report vor, der sich explizit mit der Implementierung der DIN EN ISO 11929 in die Software beschäftigt [8] und dem Benutzer Hilfestellungen bei den Einstellungen in der Software an die Hand gibt. Fehlende Umsetzung von Norm-Vorgaben konnten nicht festgestellt werden.

Für die Software InterWinner (TIK) enthält das Handbuch [9] Passagen zur Umsetzung der Ermittlung der charakteristischen Grenzen in der Software. Die verwendeten Formeln sind gleichlautend wie in der Norm, wobei teils auf andere Formelzeichen zurückgegriffen wird.

2.5.3 LSC

Gemäß Handbuch ist die Software MikroWin (Hidex) [10] in der Lage, die charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 zu ermitteln. Die in der Software hinterlegten Formeln stammen aus der Norm und wurden an das TDCR-Verfahren (triple-to-double coincidence ratio) angepasst. Es ist das bevorzugte Messverfahren in Hidex-LSC-Geräten und erlaubt eine Absolutmessung von Radionukliden mittels LSC [11]. Im Handbuch erfolgt eine detaillierte Darlegung der verwendeten Formeln sowie ein Vergleich der Softwareergebnisse mit einer manuellen Berechnung, wobei in der Regel nur Unterschiede in den Nachkommastellen festgestellt wurden. Weiterhin ist es möglich, Typ-B-Unsicherheiten individuell anzupassen. Das beschriebene Messprotokoll zur DIN EN ISO 11929 eignet sich jedoch derzeit nur für Einzelnuclidmessungen, also keine Doppelmarkierungen. Es ist weiterhin vom Benutzer sicherzustellen, dass realistische Randbedingungen festgelegt werden (u. a. hinsichtlich Typ-B-Unsicherheiten, Messdauer von Probe und Nulleffekt), um eine korrekte Berechnung zu erlauben.

Aus der Bedienungsanleitung zum Excel-Makro zur QuantaSmart-Software für die Reporterstellung nach DIN EN ISO 11929 von Perkin Elmer [12] ist zu entnehmen, dass sich das Makro zum gegenwärtigen Zeitpunkt nur zur Auswertung von Proben eignet, die lediglich ein Nuklid enthalten (Single Label DPM Assays). Die Formeln aus der ISO-Norm wurden speziell für die Anwendung der Flüssigszintillationstechnik angepasst, um den Anwendern die Berechnung so einfach wie möglich zu machen.

2.5.4 Gammaspektrometrie

Für die Software Genie 2000 bzw. Apex-InVivo /Apex (Mirion Technologies) wurde das Manual ausgewertet [13]. Zudem liegt ein Report vor, der sich explizit mit der Implementierung der DIN EN ISO 11929 in die Software beschäftigt [8] und dem Benutzer Hilfestellungen bei den Einstellungen in der Software an die Hand gibt. Diese Literaturstelle wurde bereits im Rahmen der Alphaspektrometrie diskutiert. In der Gammaspektrometrie wird es im Rahmen der Bearbeitung dieses Projektes hinsichtlich der empfohlenen Einstellungen vermutlich Abweichungen geben, um eine Übereinstimmung in der Peakflächenbestimmung zwischen den Softwarepaketen verschiedener Hersteller zu erreichen und eine bessere Vergleichbarkeit zu ermöglichen (siehe 3.3.3).

Für GammaVision (AMETEC ORTEC) liegt ebenfalls ein Manual vor, das auf die DIN EN ISO-11929-konforme Berechnung der charakteristischen Grenzen ausführlich eingeht [14]. Dabei werden zwar von der Norm abweichende Formulierungen und Formelzeichen verwendet, jedoch werden diese explizit denen in der ISO-Norm zugeordnet. Ebenso wie in Genie können auch hier laut Handbuch alle geforderten Parameter und deren Unsicherheiten explizit berücksichtigt werden.

3 Bearbeitete Teilaufgaben in AP 2

3.1 Aufgabenstellung

Aufgabenstellung AP 2 gemäß der Leistungsbeschreibung [1]

Unter Berücksichtigung der aufgezählten Anforderungen sind Messszenarien (d. h. Kombinationen aus den genannten Anforderungen) festzulegen und im Zwischenbericht darzustellen. Diese Messszenarien müssen in ihren Parametern (z. B. Messzeit und Zählhausbeute) repräsentativ für Messungen in der Inkorporationsüberwachung sein (bezüglich Gammaskpektrometrie für Ganz- oder Teilkörpermessungen, bezüglich Alphaspektrometrie und Flüssigzintillationszählung für Ausscheidungsanalytik an Urin oder Stuhl). Die unterschiedlichen angenommenen Radionuklide müssen für die Inkorporationsüberwachung relevant sein. Reale Spektren, die in Kernstrahlungsmessungen der jeweiligen Methode (jedoch nicht notwendigerweise im Zusammenhang mit Inkorporationsmessungen) gewonnen wurden und diesen Szenarien entsprechen, sind auszuwählen oder entsprechende simulierte Spektren sind zu erstellen. Spektren, die bei verschiedenen Energien unabhängig voneinander verschiedene Anforderungen erfüllen, sind ebenfalls geeignet. Reale und simulierte Spektren gelten als gleichwertig. Simulierte Spektren dürfen jedoch nicht unrealistisch idealisiert dargestellt sein; insbesondere müssen die Kanalinhalte eine statistische Streuung besitzen.

Parameter der Auswertung der Spektren, die in die Berechnung der charakteristischen Grenzen eingehen, sind ebenfalls in diesem AP festzulegen.

In Tabelle 2 sind gemäß der Leistungsbeschreibung die Anforderungen an die Auswahl von Messszenarien zusammengestellt.

Tabelle 2: Anforderungen an die Auswahl von Messszenarien entsprechend der Leistungsbeschreibung

Alphaspektrometrie	LSC	Gammaskpektrometrie
<ul style="list-style-type: none"> • ohne Messeffekt • einzelne, nicht überlappende Peaks • zwei einander überlappende Peaks • ohne Nulleffekt • mit Nulleffekt 	<ul style="list-style-type: none"> • ohne Messeffekt • mit Messeffekt • mit Nulleffekt-Abzug • mit Quench-Korrektur • einfach-markierte Proben • doppelt-markierte Proben mit Tritium und Kohlenstoff-14 • mit TDCR-Verfahren (TDCR: triple-to-double coincidence ratio) • ohne TDCR-Verfahren 	<ul style="list-style-type: none"> • ohne Messeffekt • einzelne, nicht überlappende Peaks • zwei einander überlappende Peaks (Multipletts) • auf einem Kontinuum des Spektrums • auf einem Kontinuum des Spektrums mit zusätzlichem Nulleffekt

Alphaspektrometrie	LSC	Gammaskpektrometrie
	<ul style="list-style-type: none"> • für Alphastrahlung emittierende Nuklide • für Betastrahlung emittierende Nuklide • für Tscherenkow-Zählung 	
<p>Für alle Messmethoden, soweit für die jeweilige Methode sinnvoll zutreffend:</p> <ul style="list-style-type: none"> • ohne Zerfallskorrektur • mit Zerfallskorrektur unter Berücksichtigung einer Unsicherheit der Halbwertszeit (nur Berücksichtigung des Abklingens zwischen Bezugsdatum und Zeitpunkt der Messung, d. h. ohne Berücksichtigung des Abklingens während der Messung) • mit Unsicherheit der für die Berechnung der Aktivität angewendeten Effizienzkalibrierung • mit Unsicherheit der für die Berechnung der Aktivität angewendeten Emissionswahrscheinlichkeit • ohne Eingabe weiterer Beiträge der Unsicherheit • mit manueller Eingabe eines weiteren Beitrags einer Unsicherheit vom Typ A • mit manueller Eingabe eines weiteren Beitrags einer Unsicherheit vom Typ B • mit manueller Eingabe je eines weiteren Beitrags der Unsicherheit vom Typ A und vom Typ B • mit Berechnung der Aktivität eines Radionuklids aus nur einem Peak • mit Berechnung der Aktivität eines Radionuklids als gewichteter Mittelwert aus mehreren Peaks 		

3.2 Vorgehensweise

Durch den Auftragnehmer wurden die in der Leistungsbeschreibung genannten Anforderungen an die Auswahl von Messszenarien zugrunde gelegt. Die genannten Kriterien wurden in geeigneter Weise erweitert und konkretisiert. Dabei wurden die realen Messaufgaben der Messstellen, eigene praktische Erfahrungen des Auftragnehmers sowie die einschlägige Literatur berücksichtigt, z. B. der Anwendungsleitfaden der Norm DIN EN ISO 11929 [15], Arbeiten von Fesenbeck et al. [2], Peters [16], des Kerntechnischen Ausschusses [17] oder die sehr ausführliche und umfassende Messanleitung des Bundes von Kanisch et al. [18]. Die konkrete Entwicklung der Szenarien wird je nach Methode in den nachfolgenden Abschnitten dargelegt.

Zu den Szenarien lagen dem Auftragnehmer in der Regel reale Spektren vor. Diese stammten entweder aus eigenen Messungen oder wurden von kooperierenden Messstellen zur Verfügung gestellt. Zur Erfassung von komplexeren Szenarien war in Einzelfällen der Einsatz simulierter Spektren erforderlich, die sich durch die Modifikation von realen Spektren gewinnen ließen.

Besonders großen Einfluss auf die jeweiligen Werte der charakteristischen Grenzen haben die festgelegten Wahrscheinlichkeiten für α , β und γ bzw. die sich ableitenden Quantile der Standardnormalverteilung. Folgende Festlegungen sollen unabhängig von der Messmethode für die Szenarien gelten:

- $\alpha = 0,05$ bzw. $k_{1-\alpha} = 1,645$
- $\beta = 0,05$ bzw. $k_{1-\beta} = 1,645$ sowie
- $\gamma = 0,05$ bzw. $k_{1-\gamma/2} = 1,96$

Weiterhin soll bei der Berechnung des Überdeckungsintervalls ausschließlich das probabilistisch symmetrische Intervall berücksichtigt werden.

3.3 Beschreibung der ausgewählten Messszenarien

3.3.1 Alphaspektrometrie

Zur Entwicklung der Messszenarien wurden durch den Auftragnehmer die in Tabelle 2 genannten Kriterien unter Berücksichtigung der messtechnischen Praxis erweitert und konkretisiert. Grundsätzlich können folgende Fälle unterschieden werden:

- Art des Nulleffekt: Umgebungsstrahlung, Kontamination im Untergrundspektrum Störnuklide (z. B. Blindwerte, die im Rahmen der radiochemischen Analyse auf Grund der eingesetzten Chemikalien oder Gerätschaften auftreten)
- Verfahren mit oder ohne Ausbeutetracer, sowie
- Einsatz von isotopischem Tracer oder Fremdelement-Tracer

Zur besseren Veranschaulichung wird von 4 verschiedenen praktischen Anwendungsfällen ausgegangen, die grundlegende, übergeordnete Szenarien abbilden, bei denen dann einzelne Parameter variiert werden.

Szenarios Uran: Bestimmung von Uran in Urin nach radiochemischer Trennung, feste ROIs für Uran. Folgende Parameter sollen variiert werden: liegt ein Messeffekt vor (ME oder kein ME), wird die Ausbeute über Tracer (TR) oder nur mit Kammereffizienz (KE) und empirischem Wert der chemischen Ausbeute ermittelt, erfolgt Blindwertabzug (mit BW oder ohne BW).

A01: ME, TR, ohne BW

A02: ME, TR, ohne BW, 10 % zusätzliche Unsicherheit

A03: ME, TR, ohne BW, 40 % zusätzliche Unsicherheit

A04: kein ME, TR, ohne BW

A05: ME, TR, mit BW

A06: kein ME, TR, mit BW

A07: ME, KE, ohne BW

A08: kein ME, KE, ohne BW

Szenarios Polonium: Bestimmung von Po-210 in Urin nach Abscheidung auf Nickelblech mit Peaküberlappung durch low-Tail

A09: ME, TR, ohne BW

A10: kein ME, TR, ohne BW

A11: ME, TR, ohne BW, leichte Peaküberlappung

A12: ME, TR, ohne BW, starke Peaküberlappung

Szenarios Plutonium: Bestimmung von Pu in Urin mit kontaminiertem (kTR) und isotonenreinem Tracer (iTR)

A13: ME, iTr

A14: ohne ME, iTr

A15: ohne ME, iTr, Peaküberlappung

A16: mit ME, kTr

A17: mit ME, kTr, weniger Tracerzugabe

Szenarios Thorium: Bestimmung von Thorium in Urin nach chemischer Aufarbeitung, Zugabe von Th-229 als Tracer

A18: mit ME, TR

A19: mit ME, TR, Störung durch Po-210

Szenario Ra-224: Bestimmung von Ra-224 zur Nachvollziehbarkeit, ob die Abklingkorrektur korrekt ist.

A20: Ra-224, KE

3.3.2 LSC

Zur Entwicklung der Messszenarien wurden durch den Auftragnehmer die in Tabelle 2 genannten Kriterien unter Berücksichtigung der messtechnischen Praxis erweitert und konkretisiert. Grundsätzlich können folgende Fälle unterschieden werden:

- Art der Bestimmung der Messeffizienz (Quenchkurve, Standardaddition sowie das TDCR-Verfahren)
- Art des Untergrundes (z. B. gefärbtes Wasser, exemplarische Urin-Probe oder Messreihe von Urin-Blindwerten)

Weiterhin können Verfahren mit Alpha/Beta-Diskriminierung in Betracht gezogen werden. Auch die Messung der Čerenkov-Strahlung kann für die Nuklide P-32 und Sr-90 (Y-90) in Frage kommen.

Wie mit dem Auftraggeber vereinbart, wurden vor diesem Hintergrund zunächst 20 mögliche Messszenarien im Bereich der LSC entwickelt. Es zeigte sich jedoch im Projektverlauf, dass eine 1:1 Umsetzung der Szenarien nicht möglich war. Zum einen spiegeln die tatsächlichen Messaufgaben in den Messstellen nur einen kleinen Teil der im Vorfeld entwickelten Messszenarien wider und zum anderen können die untersuchten Softwarepakete nur einen begrenzten Satz an Messszenarien überhaupt abbilden. Aus fachlichen Gründen ist dies jedoch

unproblematisch, da in der LSC tatsächlich nur wenige Standardmessszenarien eine Vielzahl der praktischen Messaufgaben abdeckt.

Es war im Rahmen dieser Untersuchung daher erforderlich, Änderungen an den im Vorfeld geplanten Szenarien vorzunehmen, welche die gelebte Praxis der Messstellen besser wiedergeben und die Möglichkeiten und Grenzen der Softwareprodukte berücksichtigen. Im Folgenden werden zunächst die 20 angedachten Szenarien beschrieben und im Anschluss die tatsächlich umgesetzten Szenarien vorgestellt.

Bei der Entwicklung der Szenarien wurde von 5 verschiedenen praktischen Anwendungsfällen ausgegangen, die grundlegende, übergeordnete Szenarien abbilden, bei denen dann einzelne Parameter variiert werden.

1. Bestimmung von H-3 in Urin nach Destillation (keine Störnuklide) mit folgenden Festlegungen: feste ROI für H-3 und Abzug des Messgeräteuntergrundes. Dabei sollen folgenden Variationsmöglichkeiten berücksichtigt werden: Bestimmung der Messeffizienz + Vorhandensein von Aktivität.

- Messeffizienz aus Quenchkurve, kein oder wenig Messeffekt
- Messeffizienz aus Quenchkurve, deutlicher Messeffekt vorhanden
- Messeffizienz nach Standardaddition, keine oder wenig Messeffekt
- Messeffizienz nach Standardaddition, deutlicher Messeffekt vorhanden
- Messeffizienz mittels TDCR, keine Aktivität
- Messeffizienz mittels TDCR, Aktivität vorhanden

2. Bestimmung von C-14 in Urin ohne Probenaufbereitung (höherenergetische Störnuklide, wie z. B. K-40) mit folgenden Festlegungen: feste ROI oberhalb von H-3 und Abzug Urin Blindwert. Der Blindwert und dessen Schwankungen ergeben sich aus Erfahrungswerten.

- Messeffizienz aus Quenchkurve, keine Aktivität
- Messeffizienz aus Quenchkurve, Aktivität vorhanden
- Messeffizienz nach Standardaddition, keine Aktivität
- Messeffizienz nach Standardaddition, Aktivität vorhanden

3. Bestimmung von P-32 in Urin nach Probenaufbereitung mit folgenden Festlegungen: Ausbeute über Bestimmung der Massenkonzentration des Gesamt-Phosphors (inaktiver Träger), feste ROI, feste Messeffizienz und Čerenkovmessung. Berücksichtigt werden folgende Variationsmöglichkeiten: Vorhandensein von Aktivität + Unsicherheitsbeitrag durch chemische Ausbeute.

- keine Aktivität, Unsicherheitsbeitrag durch chemische Ausbeute
- C12: Aktivität vorhanden, kein Unsicherheitsbeitrag durch chemische Ausbeute
- C13: Aktivität vorhanden, Unsicherheitsbeitrag durch chemische Ausbeute

4. Bestimmung von H-3 und C-14 in Urin ohne Probenvorbereitung mit folgenden Festlegungen: zwei feste ROIs, Messeffizienz von H-3 und C-14 aus je einer Quenchkurve für beide ROIs, Abzug von vorhandenem C-14 im H-3-Fenster oder nicht.

- ohne Aktivität für beide Nuklide
-

- Aktivität von H-3, aber nicht C-14
- Aktivität von C-14, aber nicht H-3
- Aktivität von C-14, aber nicht H-3, ohne Berücksichtigung von C-14 im H-3-Fenster
- Aktivität von H-3 und C-14 mit Berücksichtigung von C-14 im H-3-Fenster

5. Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivität einer Urinprobe nach Probenaufbereitung (bspw. Phosphatfällung) unter Anwendung der Alpha/Beta Diskriminierung

- mit geringer Aktivität ohne Spillover-Korrektur
- mit geringer Aktivität und Spillover-Korrektur

Das Excel Makro zur QuantaSmart Software für die Reporterstellung nach DIN EN ISO 11929 von Perkin Elmer ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt nur zur Auswertung von Proben geeignet, die lediglich ein Nuklid enthalten (Single Label DPM Assays). Zudem muss in jedem Fall eine Quenchkurve zur Auswertung hinterlegt sein. MikroWin erlaubt in der vorliegenden Version ebenfalls nur die Auswertung einfach markierter Proben. Weiterhin gehören bei den Messstellen die Gesamtalphabestimmung nicht zum Messrepertoire in der Routine. Die Auswertung von Proben nach Standardaddition wird durch die Messstellen nicht betrieben, davon abgesehen kann dieses Szenario in den Softwareprodukten auch nicht abgebildet werden.

Für die praktische Untersuchung ergaben sich somit folgende Messszenarien:

- Szenario B1: ein Nuklid in der Probe, feste ROI, Abzug des Messgeräteuntergrunds, Messeffizienz aus Quenchkurve bzw. TDCR (hier Bestimmung von H-3 in Urin nach Destillation) keine (bzw. geringe) Aktivität
- B2: wie zuvor, jedoch (erhöhte) Aktivität vorhanden
- B3 (low) wie B1, B3 (high) wie B2, jedoch Berücksichtigung einer zusätzlichen Unsicherheit von 0 %.
- B4 (low) wie B1, B4 (high) wie B2, jedoch Berücksichtigung einer zusätzlichen Unsicherheit von 15 %.
- B5 (low) wie B1, B5 (high) wie B2, jedoch Berücksichtigung einer zusätzlichen Unsicherheit von 40 %.
- B6 (low) wie B1, B6 (high) wie B2, jedoch wird statt der Bestimmung der Zählausbeute über den quenchkorrigierten TDCR nur der TDCR herangezogen
- B7 (low), B7 (high) ein Nuklid in der Probe (hier C-14), feste ROI, Abzug des Messgeräteuntergrunds, Messeffizienz aus Quenchkurve, geringe und erhöhte Aktivität
- B8 (low), B8 (high), wie B7 (low) B7 (high), jedoch Messeffizienz aus TDCR
- B9 (low), B9 (high) Čerenkovmessung (hier Sr-90/Y-90), feste ROI, Abzug des Messgeräteuntergrunds, geringe und erhöhte Aktivität

3.3.3 Gammaskpektrometrie

Bei der Auswahl der 20 Szenarien für die gammaskpektrometrischen Messungen mittels Ganz- und Teilkörperzähler wurden die folgenden Parameter für die zu untersuchenden Szenarien variiert:

- Vorhandensein von Aktivität
- Untergrundabzug im Peak
- Peaks im Multiplett
- Ein- oder Mehrlinienstrahler

Mit „Untergrund im Peak“ ist hier ein Auftreten des Nuklids in der Untergrundmessung (bzw. Nulleffektmessung) zu verstehen, wie z. B. K-40. Der Untergrund des Kontinuums wird in der Gammaskpektrometrie immer abgezogen. Darüber hinaus werden in einigen Szenarien die Zerfallskorrekturen durchgeführt und ihre Unsicherheiten berücksichtigt. Ebenso werden teilweise zusätzliche Typ-A- und Typ-B-Unsicherheiten eingegeben. Die Unsicherheiten für die Effizienzkalibrierung und Emissionswahrscheinlichkeiten werden in allen Szenarien berücksichtigt, da diese bei den zu untersuchenden Programmen für die Gammaskpektrometrie immer Verwendung finden.

Für alle im Folgenden aufgeführten Szenarien gibt es eine Reihe an praktischen Beispielen. Um jedoch die Prüfung der Umsetzung der Norm besser zu bewerkstelligen, wurden häufig Spektren gewählt die aus anderen Anwendungsbereichen stammen und einen Effekt z. B. klarer zeigen als er in der Inkorporationsmessung typisch ist. Die Auswahl der Gammaskpektren hat dabei keinen Einfluss auf die Berechnung der charakteristischen Grenzen. Auch die Betrachtung von Halbleiterdetektoren oder Szintillationsdetektoren hat keinen Einfluss auf die Art und Weise der Berechnung, sondern lediglich auf die zur Bestimmung der Peaks und Peakflächen zu wählenden Parameter. So gibt es eine Vielzahl von Ein- und Mehrlinienstrahlern, die mittels Halbleiterdetektoren ohne Multipletts bestimmt werden können. Untergrundpeaks können vor allem durch natürliche Radionuklide insbesondere bei Szintillationsdetektoren eine Rolle spielen, treten aber auch bei Halbleiterdetektoren (z. B. bei der Messung von Ge-68 über die Annihilationslinie bei 511 keV) häufig auf. Ebenso kommt es vor allem in Zusammenhang mit natürlicher Radioaktivität zu einer Reihe von Peaks, die nicht nur bei Szintillationsdetektoren zu Multipletts mit zu analysierenden Radionukliden führen, sondern auch bei Halbleiterdetektoren (z. B. Ba-133 mit 81 keV im Bereich der Röntgenlinien). Bei der Auswahl der Szenarien wurde darauf geachtet, dass alle relevanten Einflussfaktoren auf die charakteristischen Größen mindestens einmal separat untersucht wurden. Die folgenden Szenarien wurden ausgewählt:

1. Keine Aktivität vorhanden; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Einlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
2. Keine Aktivität vorhanden; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Einlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit
3. Keine Aktivität vorhanden; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Mehrlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
4. Keine Aktivität vorhanden; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Mehrlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur und zusätzliche Unsicherheit

5. Keine Aktivität vorhanden; mit Untergrund im Peak; kein Multiplett; Einlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
6. Keine Aktivität vorhanden; mit Untergrund im Peak; mit Multiplett; Einlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
7. Aktivität in einer Linie des Mehrlinienstrahlers vorhanden; kein Untergrund im Peak; Einlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
8. Mit Aktivität; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Einlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur; ohne zusätzliche Unsicherheit
9. Mit Aktivität; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Einlinienstrahler; mit zusätzlicher Unsicherheit; keine Zerfallskorrektur
10. Ohne Aktivität; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Einlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur keine zusätzliche Unsicherheit
11. Mit Aktivität; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Mehrlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
12. Mit Aktivität; kein Untergrund im Peak; kein Multiplett; Mehrlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit
13. Mit Aktivität; kein Untergrund im Peak; mit Multiplett; Einlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
14. Mit Aktivität; kein Untergrund im Peak; mit Multiplett; Einlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit
15. Mit Aktivität; mit Untergrund im Peak; kein Multiplett; Einlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
16. Mit Aktivität; mit Untergrund im Peak; kein Multiplett; Einlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit
17. Mit Aktivität; mit Untergrund im Peak; mit Multiplett; Einlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
18. Mit Aktivität; mit Untergrund im Peak; mit Multiplett; Einlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit
19. Mit Aktivität; mit Untergrund im Peak; mit Multiplett; Mehrlinienstrahler; keine Zerfallskorrektur oder zusätzliche Unsicherheit
20. Mit Aktivität; mit Untergrund im Peak; mit Multiplett; Mehrlinienstrahler; mit Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit

Neben den oben genannten Parametern gibt es in der Gammaskpektrometrie eine Reihe weiterer Parameter, die das Ergebnis beeinflussen. Dabei geht es in erster Linie um die verschiedenen Parameter für die Peaksuche und Peakflächenbestimmung. Für diese Parameter gibt es z. B. mit dem Bericht zur Qualifizierung der DIN EN ISO 11929 [8] für Genie 2000 eine sehr detaillierte Empfehlung des Herstellers. Im Rahmen der Bearbeitung dieses Projektes ist es jedoch nötig, von diesen Parametern und Analysemethoden abzuweichen, um zum Vergleich der Softwarepakete verschiedener Hersteller mit identischen Peakflächen und Untergrunddaten arbeiten zu können. In komplizierteren Einzelfällen (z. B. Untergrund im Peak mit Multiplett) scheint es zumindest denkbar, dass es nicht möglich sein könnte, die Daten zur Übereinstimmung zu bringen. Werden die Unterschiede zu groß, kann es möglich sein, dass für ein Szenario beide Softwarepakete separat mit UncertRadio verglichen werden müssen.

4 Bearbeitete Teilaufgaben in AP 3

4.1 Aufgabenstellung

Aufgabenstellung AP 3 gemäß der Leistungsbeschreibung [1]

Die Messszenarien sind in die jeweiligen Software-Pakete einzuspielen und mit geeigneten Routinen auszuwerten. Die charakteristischen Grenzen sind außerdem mit Hilfe einer geeigneten Software (Tabellenkalkulation oder selbst erstellter Computercode) selbst zu berechnen sowie mit der Software UncertRadio (in der zu Beginn dieser Arbeiten neuesten Version) zu berechnen. Dafür wählt der Auftragnehmer das gemäß DIN EN ISO 11929 geeignete Rechenverfahren aus. Stimmen die Erkennungs- und Nachweisgrenzen sowie die Breite des Vertrauensbereichs um bis zu 5 Prozent überein, kann das Ergebnis als validiert angesehen werden. Bei größeren Abweichungen ist soweit wie möglich die Ursache in der Berechnung der Grenzen in der jeweiligen Software zu identifizieren. Unter Umständen sind dafür zusätzliche Messszenarien zu untersuchen, die sich von dem Messszenario, bei dem die Abweichung festgestellt wurde, in einzelnen Aspekten unterscheiden; die Anzahl der untersuchten Messszenarien erhöht sich dadurch im Vergleich zur Anzahl aus dem Angebot. Gegebenenfalls ist zu überprüfen, ob abweichende Ergebnisse mit einer älteren Ausgabe der Norm konsistent sind und dabei in der Software-Dokumentation ein Bezug auf diese ältere Ausgabe genommen wird. Der Auftragnehmer kann dieses Arbeitspaket eigenständig durchführen. Zur Einsparung von Kosten und Installationsaufwand wird jedoch empfohlen, dafür Installationen der Software, die an anderen Stellen (insbesondere in Inkorporationsmessstellen oder anderen Laboren) vorhanden sind, zu nutzen, sofern der Auftragnehmer nicht selbst Lizenzen dieser Software besitzt. Falls Software erst erworben werden muss, ist im Angebot anzugeben, dass die Software ausschließlich zur Durchführung des Vorhabens benötigt wird und damit unverzichtbar ist, dass vorhandene Betriebsmittel dafür nicht eingesetzt werden können und dass keine günstigeren Alternativen (wie eine Überlassung der Software zum vorübergehenden Gebrauch) möglich sind.

4.2 Vorbemerkung

Im Folgenden werden die Ergebnisse für die Messverfahren Alphaspektrometrie, LSC und Gammaspektrometrie in einzelnen Kapiteln vorgestellt. Soweit erforderlich, werden dabei zunächst allgemeine Grundlagen zu den durchgeführten Berechnungen sowie erforderliche modellhafte Festlegungen zur Ermöglichung des Vergleichs der Softwareprodukte beschrieben. Anschließend erfolgen die Berechnungen für die im Kapitel 3.3 beschriebenen Szenarien (so weit möglich) inklusive einer Bewertung der Ergebnisse. Schließlich werden bei den Messverfahren Alpha- und Gammaspektrometrie noch die Ergebnisse der Prüfung von Manuals weiter, nicht im Rahmen des Projekts untersuchter Softwareprodukte hinsichtlich der Auswertung nach DIN EN ISO 11929 vorgestellt.

4.3 Alphaspektrometrie

4.3.1 Grundlagen und Modell der Auswertung

Die Grundlage der Alphaspektrometrie bildet der Alphazerfall gemäß folgender Gleichung:



Der He-Kern (das Alphateilchen) wird aus dem Ursprungskern Nuk herausgeschleudert. Der Rückstoßkern Nuk2 und der He-Kern entfernen sich in entgegengesetzte Richtungen. Dabei gelten der Energie- und der Impulserhaltungssatz. Der Rückstoßkern kann dabei in einem angeregten Zustand verbleiben, wobei die kinetische Energie des He-Kerns dann entsprechend geringer ist. Der Übergang des Mutterkerns in den Grundzustand erfolgt dann durch Emission von Gamma-Strahlung oder Konversionselektronen, die ebenfalls Energie im

Detektor deponieren können. Die Emissionswahrscheinlichkeiten der einzelnen Alphalinien sind in entsprechenden Publikationen und Datenbanken zu finden. Dabei ist zu beachten, dass die im Spektrum festgestellten Peakflächenverhältnisse aufgrund von Summationseffekten mit der Abregungsstrahlung des Mutterkerns nur für einen großen Abstand zwischen Detektor und Probe den tabellierten Werten für die Emissionswahrscheinlichkeit entsprechen. In den aufgenommenen Spektren sind allerdings Summationen zu beachten, da beispielsweise Auger-Elektronen (wie z. B. bei Am-241 oder Am-243) bei gleichzeitiger Aussendung im Alphaspektrum als Schulter zu höherer Energie beobachtet werden. Aber auch bei den Hauptpeaks der Alphaspektren sind Verschiebungen festzustellen. Bei dem Nuklid Th-228 beispielsweise sind zwei Hauptlinien bei 5423 keV (73,4 %) und 5340 keV (26,0 %) tabelliert. Tatsächlich werden durch die Summationen Peakflächenverhältnisse von 81 % zu 19 % festgestellt. Um dieses Problem zu umgehen werden Alphaspektren meist durch Auswertung einer region of interest (ROI) ausgewertet, die möglichst alle Einzellinien umfasst. Ist das allerdings nicht möglich – z. B. bei U-235 überlappen einzelne Linien mit denen anderer Uranisotope – so ist es zweckmäßig, die Unsicherheit der Emissionswahrscheinlichkeit zu erhöhen, da durch die Summationen ebenfalls Verschiebungen zu erwarten sind, die aber nur mit isotopenreinem U-235 überprüft werden könnten.

Berechnungsgrundlagen

Für die Auswertung der Messszenarien ist es vorteilhaft, Szenarien mit Ausbeutetracer und ohne Tracer mit einer geschätzten Ausbeute getrennt zu betrachten. Der Blindwertabzug verkompliziert die Berechnung, so dass das Aufstellen einer expliziten Gleichung für die Berechnung der Nachweisgrenze – also die Berechnung ohne Iteration – zu sehr langen Gleichungen führt, die bei einer Validierung von Excel-Rechenblättern wahrscheinlich bemängelt werden würden. Zur Berücksichtigung können beliebig viele Terme in den erweiterten Kalibrierfaktor einbezogen werden, z. B. auch eine Abklingkorrektur. Allerdings ist zu berücksichtigen, dass eine Rückrechnung auf einen Bezugszeitpunkt nur dann erfolgen kann, wenn die Nachbildung aus den jeweiligen Mutternukliden ausgeschlossen werden kann oder die Aktivität des Mutternuklids bekannt ist. Die verfügbaren Programme haben allerdings keine Eingabefelder, die die Eingabe der Messwerte und Unsicherheiten der Mutternuklide vorsehen.

Abklingkorrektur

Für das Abklingen zwischen einem Bezugszeitpunkt (BZ) – bei der Ausscheidungsanalytik auf das Ende der Sammelperiode festgesetzt – und dem Start der Messung (MD) wird der Korrekturfaktor wie folgt berechnet:

$$f_1 = e^{-\frac{\ln(2) \cdot (BZ - MD)}{HWZ}} \quad (2)$$

Sofern die Messdauer weniger als 1 % der Halbwertszeit (HWZ) beträgt, kann für den Tracer und den Analyten die Rückrechnung von der Mitte der Messung zum Bezugszeitpunkt erfolgen.

Ansonsten wird das Abklingen während der Messung mit der Messdauer t_m mit einem weiteren Korrekturfaktor wie folgt berechnet:

$$f_2 = \frac{\ln(2) \cdot \frac{t_m}{HWZ}}{1 - e^{-\ln(2) \cdot \frac{t_m}{HWZ}}} \quad (3)$$

In der Regel ist es nicht erforderlich, die Unsicherheiten der Abklingkorrektur zu berücksichtigen, da die Halbwertszeiten kurzlebiger Radionuklide meist sehr genau bekannt sind. Bei Radionukliden mit längerer Halbwertszeit nimmt zwar die Unsicherheit der Halbwertszeit zu, aber die Dauer zwischen Bezugszeitpunkt und Messzeitpunkt ist vernünftigerweise auf wenige Jahre begrenzt.

Verfahren mit Tracer ohne Blindwert:

Bei den Verfahren mit Tracer kann folgendes Modell zur Berechnung der Aktivität aufgestellt werden:

$$A_i = \frac{(R_{b,i} - R_{0,i})}{(R_{b,Tr} - R_{0,Tr})} \cdot A_{Tr} \cdot \frac{p_{\epsilon,Tr}}{p_{\epsilon,i}} \quad (4)$$

Dabei sind:

A_i Aktivität des Nuklids i ,

A_{Tr} Aktivität des Tracers,

$R_{b,i}$ Bruttozählrate in der ROI des Nuklids i ,

$R_{0,i}$ Untergrundzählrate in der ROI des Nuklids i ,

$R_{b,Tr}$ Bruttozählrate in der ROI des Tracers,

$R_{0,Tr}$ Untergrundzählrate in der ROI des Tracers,

$p_{\epsilon,i}$ Nachweiswahrscheinlichkeit des Nuklids i in der ROI des Nuklids i ,

$p_{\epsilon,Tr}$ Nachweiswahrscheinlichkeit des Tracers in der ROI des Tracers.

Die Nettozählrate des Nuklids i ergibt sich aus:

$$R_{n,i} = R_{b,i} - R_{0,i} \quad (5)$$

Alle Terme, die multiplikativ mit der Nettozählrate verknüpft sind, können zum erweiterten Kalibrierfaktor ω_i zusammengefasst werden:

$$\omega_i = \frac{A_{Tr}}{(R_{b,Tr} - R_{0,Tr})} \cdot \frac{p_{\epsilon,Tr}}{p_{\epsilon,i}} \quad (6)$$

Für die Aktivität ergibt sich dann:

$$A_i = \omega_i \cdot (R_{b,i} - R_{0,i}) \quad (7)$$

Zur Berechnung der Unsicherheit u der Aktivität kann folgende Gleichung aufgestellt werden:

$$u^2(A_i) = \left[\frac{\partial A_i}{\partial \omega_i} \cdot u(\omega_i) \right]^2 + \left[\frac{\partial A_i}{\partial R_{n,i}} \cdot u(R_{n,i}) \right]^2 \quad (8)$$

In allen Fällen, in denen die gemessenen Zählraten größer 0 sind, ergibt sich für die Unsicherheit der Nettozählrate folgende Gleichung:

$$u(R_{n,i}) = \sqrt{\frac{R_{b,i}}{t_m} + \frac{R_{0,i}}{t_0}} \quad (9)$$

Durch Berechnung der partiellen Ableitungen und Einsetzen von Gleichung (9) in (8) ergibt

$$u^2(A_i) = \left[A_i \frac{u(\omega_i)}{\omega_i} \right]^2 + \omega_i^2 \cdot \left(\frac{R_{b,i}}{t_m} + \frac{R_{0,i}}{t_0} \right) \quad (10)$$

Die Bruttozählrate in Gleichung (10) kann gemäß Gleichung (5) als Summe von Netto- und Untergrundzählrate ersetzt werden.

$$u^2(A_i) = \left[A_i \frac{u(\omega_i)}{\omega_i} \right]^2 + \omega_i^2 \left(\frac{R_{n,i} + R_{0,i}}{t_m} + \frac{R_{0,i}}{t_0} \right) \quad (11)$$

$$u^2(A_i) = \left[A_i \frac{u(\omega_i)}{\omega_i} \right]^2 + \omega_i^2 \cdot R_{0,i} \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0} \right) + A_i \cdot \frac{\omega_i}{t_m} \quad (12)$$

Gleichung (12) zeigt die Unsicherheitsfunktion, die für die Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenze benötigt wird.

Für die Berechnung der Erkennungsgrenze gilt folgende Gleichung (DIN EN ISO 11929:2021-1 Gl. (7)):

$$A_i^* = k_{1-\alpha} \cdot u(A_i = 0) \quad (13)$$

Dabei ist $k_{1-\alpha}$ das Quantil der Standardnormalverteilung für Fehler 1. Art.

Durch Einsetzen von (12) in (13) kann man die Gleichung zur Berechnung der Erkennungsgrenze aufstellen, wobei alle Terme, die A_i als Faktor enthalten, entfallen:

$$A_i^* = k_{1-\alpha} \cdot \omega \cdot \sqrt{R_{0,i} \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0} \right)} \quad (14)$$

Zur Berechnung der Nachweisgrenze gilt folgende allgemeine Gleichung (DIN EN ISO 11929:2021-1 Gl. (9)):

$$A_i^\# = A_i^* + k_{1-\beta} \cdot u(A_i = A_i^\#) \quad (15)$$

Durch Einsetzen von (12) in (15) kann man die Gleichung zur Berechnung der Nachweisgrenze aufstellen:

$$A_i^\# = A_i^* + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{\left(A_i^\# \cdot \frac{u(\omega_i)}{\omega_i} \right)^2 + \omega_i^2 \cdot R_{0,i} \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_m} \right) + A_i^\# \cdot \frac{\omega_i}{t_m}} \quad (16)$$

Dabei ist $k_{1-\beta}$ das Quantil der Standardnormalverteilung für Fehler 2. Art.

Diese implizite Gleichung kann entweder durch Iteration gelöst werden oder durch Anwendung der Lösungsformel für quadratische Gleichungen.

Die relative Unsicherheit des erweiterten Kalibrierfaktors ergibt sich wie folgt

$$\frac{u(\omega_i)}{\omega_i} = \sqrt{u_{rel}^2(A_{Tr}) + u_{rel}^2(R_{n,Tr}) + u_{rel}^2(p_{\varepsilon,Tr}) + u_{rel}^2(p_{\varepsilon,i})} \quad (17)$$

Nachdem diese Berechnungen erfolgt sind, wird anhand der Ergebnisse entschieden, ob der der Messgröße entsprechende physikalische Effekt vorliegt oder das Ergebnis nicht dem physikalischen Effekt zugeschrieben werden kann. Dazu wird das primäre Messergebnis A_i mit der Erkennungsgrenze verglichen.

Sofern das primäre Messergebnis größer als die Erkennungsgrenze ist, wird die untere und obere Grenze des Überdeckungsintervalls wie folgt berechnet:

$$A^{\triangleleft} = A - k_p \cdot u(A) \quad \text{mit} \quad p = \phi(A/u(A)) \cdot \left(1 - \frac{\gamma}{2}\right) \quad (18)$$

$$A^{\triangleright} = A + k_q \cdot u(A) \quad \text{mit} \quad q = 1 - \phi(A/u(A)) \cdot \frac{\gamma}{2} \quad (19)$$

Außerdem wird – sofern ein Beitrag der Probe erkannt wurde – der beste Schätzer und dessen Unsicherheit wie folgt berechnet:

$$\hat{A} = A + \frac{\varphi(A/u(A))}{\phi(A/u(A))} \cdot u(A) \quad (20)$$

$$u(\hat{A}) = \sqrt{u^2(A) - (\hat{A} - A) \cdot \hat{A}} \quad (21)$$

Dabei sind:

A^{\triangleleft} untere Grenze des probabilistisch symmetrischen Überdeckungsintervalls

A^{\triangleright} obere Grenze des probabilistisch symmetrischen Überdeckungsintervalls

\hat{A} bester Schätzwert nach Bayes

$u(\hat{A})$ absolute Standardunsicherheit des besten Schätzwertes nach Bayes

$\varphi(A/u(A))$ Wahrscheinlichkeitsdichte der standardisierten Normalverteilung

$\phi(A/u(A))$ Verteilungsfunktion der standardisierten Normalverteilung

p, q Wahrscheinlichkeiten für die Quantile der unteren bzw. oberen Grenze des Überdeckungsintervalls

Verfahren ohne Tracer

Bei Verfahren ohne Tracer erfolgt die Berechnung gemäß folgendem Modell:

$$A_i = \frac{(R_b - R_0)}{\varepsilon \cdot \eta \cdot p_{\varepsilon,i}} \quad (22)$$

Dabei sind neben den schon eingeführten Größen:

ε Messeffizienz der Kammer,

η Chemische Ausbeute.

Die Berechnung der charakteristischen Grenzen und Unsicherheiten erfolgt analog zu dem Verfahren mit Tracer, wobei insbesondere der chemischen Ausbeute eine entsprechend hohe Unsicherheit zugewiesen werden muss.

Verfahren mit Tracer und Blindwert

Als Blindwert wird die Aktivität bezeichnet, die man erhält, wenn man das komplette Analysenverfahren mit einer Probe durchführt, die keine Aktivität hat. Er kommt durch geringfügige Kontaminationen in den eingesetzten Chemikalien oder Gerätschaften zustande. Üblicherweise wird dazu entionisiertes Wasser angesäuert und mit Tracer und eventuell noch etwas Salzfracht versehen. Diese Analysen werden in regelmäßigen Abständen beispielsweise einmal im Quartal durchgeführt. Die Software PA1 arbeitet für die Berücksichtigung von Blindwerten mit dem folgendem Modell 1:

$$A_i = \frac{(R_{b,i} - R_{0,i})}{(R_{b,Tr} - R_{0,Tr})} \cdot A_{Tr} \cdot \frac{p_{\varepsilon,Tr}}{p_{\varepsilon,i}} \quad (23)$$

Das Modell 2 soll das darstellen, was bei PA2 umgesetzt wird:

$$A_i = \frac{(R_{b,i} - R_{0,i} - (R_{b,Tr} - R_{0,Tr}) \cdot k_{IV,i})}{(R_{b,Tr} - R_{0,Tr})} \cdot A_{Tr} \cdot \frac{p_{\varepsilon,Tr}}{p_{\varepsilon,i}} \quad (24)$$

Dabei sind:

A_V Blindwert der Verunreinigung mit dem Nuklid i ,

$k_{IV,i}$ Kontaminationsfaktor mit dem Nuklid i .

Der Kontaminationsfaktor stellt das Isotopenverhältnis zwischen dem Nuklid i und dem Tracer-nuklid dar, das durch eine separate Messung – der Blindwertmessung – ermittelt wird. Dabei kann es sich sowohl um einen Chemikalienblindwert aus der Blindwertanalyse oder um eine Kontamination des Tracers handeln. Da bei der Bearbeitung des Projektes mit der Software PA1 begonnen wurde, bildet das Modell auch die Grundlage für eigene Berechnungen. Sofern bei einem Szenario deutliche Abweichungen festgestellt werden, werden die Berechnungen ebenfalls unter Nutzung des Alternativmodelles durchgeführt.

Folgende Ausbeutetracer wurden in den verschiedenen Szenarien benutzt:

Tabelle 3: Bei den Szenarien verwendete Tracer

Tracer	Szenarien	Aktivitätskonz. (Bq/mL)	$u_{rel}(A)$ (%)	Bezugsdatum
U-232	A01 – A06	0,241	5,0	01.11.2017
Po-209	A09 – A12	0,21316	5,0	01.12.2013
Pu-242 (sauber)	A13 – A15	0,15	5,0	01.01.2023
Pu-242 (kont.)	A16 – A17	0,9177	5,0	01.03.2023
Th-229	A18 – A19	0,22	5,0	01.01.2023

An dieser Stelle wird darauf hingewiesen, dass bei der Software PA2 nicht die Aktivitätskonzentration des Tracers, sondern die Alphaemissionsrate anzugeben ist. Dadurch können sich an jeder Stelle der Berechnungen geringfügige Unterschiede ergeben.

In 3.3.1 wurden die Szenarien dargelegt, die hier umgesetzt werden sollen. Für Uran wurden acht Szenarien umgesetzt, bei denen Folgendes variiert wird: Vorliegen des Messeffektes, Berücksichtigung zusätzlicher Unsicherheiten, Messeffizienz über Tracer oder Kammereffizienz und Abzug eines Blindwertes. Für Polonium wurden vier Szenarien untersucht. Neben dem Vorliegen des Messeffektes wurde bei zwei Szenarien die Fähigkeit der Programme geprüft, Spektren mit Peaküberlappungen zu fitten. Für Plutonium wurden fünf Szenarien umgesetzt. Dabei wurde ein isotoopenreiner und ein kontaminierter Tracer eingesetzt. Bei einem weiteren Szenario wird ein Spektrum mit Peaküberlappungen untersucht. Zwei weitere Szenarien wurden für Thorium eingeführt, um zu prüfen, inwiefern man mit verschiedenen Emissionswahrscheinlichkeiten eine Auswertung in einer verkürzten ROI durchführen kann. Beim letzten Szenario wird anhand des kurzlebigen Nuklids Ra-224 geprüft, ob das Abklingen in den Auswerteprogrammen richtig berücksichtigt wird.

Abweichungen der ermittelten Werte von den eigenen Berechnungen, die oberhalb von 5 % liegen, werden in den Tabellen durch fette Schrift hervorgehoben.

4.3.2 Szenario A01: Uran, mit Messeffekt

Gemessen wurde Uran mit Tracer (100 µL U-232). Messstart war 19.04.2023 16:48 Uhr. Ein Bezugsdatum wurde nicht festgelegt. Folgende Werte wurden dabei ermittelt:

Tabelle 4: Aufgenommene Messdaten für Szenario A01.

	Messdauer (s)	U-238 (Impulse)	U-235 (Impulse)	U-234 (Impulse)	U-232 (Impulse)
Probe	166327	38	2	62	598
Untergrund	843197	4	0	3	19

Tabelle 5: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit u(BS), die Erkennungs- und Nachweisgrenze (EKG bzw. NWG) sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls (UG und OG) bei A01 für das Nuklid U-238.

U-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	1,43E-03	2,56E-04	6,15E-05	2,30E-04	9,29E-04	1,93E-03
UR	1,43E-03	2,56E-04	6,14E-05	2,30E-04	9,29E-04	1,93E-03
PA1	1,43E-03	2,56E-04	6,15E-05	2,30E-04	9,29E-04	1,93E-03
PA2	1,43E-03	2,55E-04	6,15E-05	2,30E-04	9,30E-04	1,93E-03
PA2 + Patch	1,43E-03	2,55E-04	6,15E-05	2,30E-04	9,30E-04	1,93E-03
Abweichung in %	BS	u(BS)	EKG	NWG	UG	OG
EB	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
UR	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
PA1	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
PA2	0,0%	-0,2%	0,0%	0,0%	0,1%	0,0%
PA2 + Patch	0,0%	-0,2%	0,0%	0,0%	0,1%	0,0%

Bei U-238 besteht eine gute Übereinstimmung zwischen allen Berechnungsmethoden. Die höchste Abweichung zwischen einer Berechnungsmethode und der selbst durchgeführten Rechnung beträgt 0,2 %. Für U-234 wird auf eine vergleichbare Darstellung verzichtet, da sich nur die Zahlenwerte minimal unterscheiden.

Tabelle 6: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennung- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls bei A01 für das Nuklid U-235.

U-235	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	1,03E-04	5,66E-05	3,67E-05	2,02E-04	9,19E-06	2,23E-04
UR	9,62E-05	5,54E-05	3,67E-05	2,02E-04	7,59E-06	2,15E-04
PA1	1,03E-04	5,66E-05	3,68E-05	2,02E-04	9,19E-06	2,23E-04
PA2	1,11E-04	6,57E-05	7,56E-05	2,82E-04	8,02E-06	2,53E-04
PA2 + Patch	1,03E-04	5,70E-05	1,49E-05	1,58E-04	9,10E-06	2,24E-04
Abweichung in %	BS	u(BS)	EKG	NWG	UG	OG
EB	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
UR	-6,1%	-2,1%	0,0%	0,0%	-17,4%	-3,2%
PA1	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
PA2	8,1%	16,1%	105,8%	39,7%	-12,7%	13,8%
PA2 + Patch	0,4%	0,8%	-59,4%	-21,9%	-0,9%	0,7%

Bei Uran-235 treten hingegen signifikante Abweichungen auf. Bei UncertRadio bestehen Abweichungen beim besten Schätzer, seiner Unsicherheit und den Grenzen des Überdeckungsintervalls. Ursächlich dafür ist eine abweichende Vorgehensweise, wenn keine Counts im Untergrund festgestellt werden konnten. Während die Programme sowie die eigene Rechnung das primäre Messergebnis auf Grundlage der Originaldaten berechnen, wird bei UncertRadio der Norm entsprechend die Zählrate auf $1/t$ gesetzt und mit dieser manipulierten Zählrate weitergerechnet. Was hier gemäß der Norm als richtig anzusehen ist, scheint unklar. In der Norm steht Folgendes:

„Bei Anwendung von DIN EN ISO 11929-1 müssen $r = n/t$ und $u^2(r) = r/t = n/t^2$ gesetzt werden, wenn $n > 0$ und, $r = 1/t$ und $u^2(r) = 1/r^2$.“ [19]

Für die Bearbeiter des Projekts erscheint es allerdings nicht zweckmäßig, die entsprechend der Norm geänderte Zählrate im Untergrund für die Berechnung des primären Messergebnisses heranzuziehen, sondern lediglich zu nutzen, um die charakteristischen Grenzen und die Unsicherheiten zu berechnen.

Ebenfalls werden Abweichungen bei PA2 beobachtet. Für den Untergrundabzug werden bei PA2 die im Untergrundspektrum ermittelten Untergrundimpulse auf die oft kürzere Messdauer des Probenspektrums heruntergebrochen. Wurden nun keine Impulse im Untergrundspektrum registriert, so wird beim Probenspektrum die Unsicherheit der Impulse bei einer Messdauer auf 1 (fett in Tabelle 7) gesetzt. Tritt hingegen 1 Impuls im Untergrund auf und ist die Messdauer des Untergrunds z. B. dreimal länger als die des Probenspektrums, dann nimmt die Software $1/3 = 0,333$ Impulse für den Untergrund (kursiv in Tabelle 7) an und weist den Untergrundimpulsen eine Unsicherheit von ebenfalls 0,333 (kursiv in Tabelle 7) zu.

Tabelle 7: Darstellung des Untergrundabzugs bei PA2. Oben Rohdaten der Messung, unten Softwareausgabe ohne Patch.

t_b	n_b	$u(n_b)$	n_0	$u(n_0)$	t_0
100.000	1	1	0	1	300.000
100.000	1	1	1	1	300.000
1	400	20	4	2	300.000
Peak.	Original	Orig. Fl.	Labor	Untergr.	Subtrahier.
Nr.	Fläche	Unsich	untergrund	Unsich.	Fläche
1	1	1	0,000	1,000	1,000
2	1	1	0,333	0,333	0,666
3	400	20	1,333	0,666	399,333

Wie man nun leicht erkennen kann, muss statt der 1 (fett markiert in Tabelle 7) als Unsicherheit der Untergrundimpulse richtigerweise der Quotient aus t_m/t_0 (also 0,333) gebildet werden.

Dieses Problem wurde mittlerweile durch einen Patch behoben. Nutzt man den Patch, so sind die Abweichungen für den besten Schätzer, dessen Unsicherheit und die Grenzen des Überdeckungsintervalls unter 1 %. Bei den Erkennungs- und Nachweisgrenzen verbleiben auch nach Verwendung des Patches Unterschiede. PA2 verwendet eine andere Formel für die Berechnung. Rein phänomenologisch betrachtet entspricht die durch PA2 berechnete Erkennungsgrenze einer Extrapolation von $EKG = f(I_0)$ auf $I_0 = 0$ und ist damit ein sinnvolles Ergebnis. Allerdings sind bei Anwendung von DIN EN ISO 11929-1 folgende Festlegungen für den Fall, dass eine Zählrate 0 ist, vorgesehen: $R=1/t$ und $u^2(R)=1/t^2$. Setzt man diese Festlegungen um, müssten die Erkennungsgrenzen für 0 Impulse beziehungsweise 1 Impuls gleich sein, da bei einem Impuls ebenfalls $R=1/t$ und $u^2(R)=1/t^2$ gilt.

4.3.3 Szenario A02 und A03: Uran, mit Messeffekt, Variation zusätzlicher Unsicherheiten

Bei A02 und A03 werden ausgehend von A01 zusätzliche Unsicherheiten in Höhe von 10 % bzw. 40 % angewendet. Ziel ist hier herauszufinden, ob zusätzliche Unsicherheiten richtig einbezogen werden und die Nachweisgrenzen sich bei gleichbleibenden Erkennungsgrenzen entsprechend erhöhen. Die Berechnungsergebnisse sind in Tabelle 7 zusammengestellt.

Für U-238 sind die Ergebnisse nahezu identisch. Bei der eigenen Berechnung, bei UncertRadio und den beiden Softwarepaketen werden zusätzliche Messunsicherheiten korrekt berücksichtigt. Bei allen Berechnungsverfahren wird richtigerweise festgestellt, dass die Nachweisgrenze – aber nicht die Erkennungsgrenze – mit steigenden zusätzlichen Unsicherheiten ansteigt.

Die Darstellung der Ergebnisse für U-234 und U-235 ergibt keinen zusätzlichen Informationsgewinn, daher wurde auf deren Darstellung verzichtet.

Tabelle 8: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls bei den Szenarien A01, A02 und A03 für das Nuklid U-238.

U-238	Sz.	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	A01	1,43E-03	2,56E-04	6,15E-05	2,30E-04	9,29E-04	1,93E-03
EB	A02	1,43E-03	2,93E-04	6,15E-05	2,36E-04	8,57E-04	2,00E-03
EB	A03	1,45E-03	6,04E-04	6,15E-05	4,09E-04	3,03E-04	2,66E-03
UR	A01	1,43E-03	2,56E-04	6,14E-05	2,30E-04	9,29E-04	1,93E-03
UR	A02	1,43E-03	2,93E-04	6,14E-05	2,36E-04	8,56E-04	2,00E-03
UR	A03	1,45E-03	6,05E-04	6,14E-05	4,09E-04	3,02E-04	2,66E-03
PA1	A01	1,43E-03	2,56E-04	6,15E-05	2,30E-04	9,29E-04	1,93E-03
PA1	A02	1,43E-03	2,93E-04	6,15E-05	2,36E-04	8,56E-04	2,00E-03
PA1	A03	1,45E-03	6,05E-04	6,15E-05	4,09E-04	3,03E-04	2,66E-03
PA2	A01	1,43E-03	2,55E-04	6,15E-05	2,30E-04	9,30E-04	1,93E-03
PA2	A02	1,43E-03	2,93E-04	6,15E-05	2,36E-04	8,57E-04	2,00E-03
PA2	A03	1,45E-03	6,05E-04	6,15E-05	4,09E-04	3,03E-04	2,66E-03

4.3.4 Szenario A04: Uran, wenig Messeffekt

Bei diesem Szenario sind ebenfalls die Uran-Nuklide zu bestimmen. Im Gegensatz zu A01 sind die Aktivitäten jedoch deutlich geringer.

Tabelle 9: Aufgenommene Messdaten für A04.

	Messdauer (s)	U-238 (Impulse)	U-235 (Impulse)	U-234 (Impulse)	U-232 (Impulse)
Probe	90175	7	0	10	284
Untergrund	843197	4	0	3	19

Geprüft werden soll in diesem Szenario wie die Software mit null Impulsen in der Messung und im Untergrund umgeht. Zudem soll geprüft werden, welche Ergebnisse man angezeigt bekommt, wenn der Messeffekt nicht vorliegt.

Bei U-238 und U-234 sind die Ergebnisse nahezu identisch. Bei U-235 hingegen treten wie bei Szenario A01 Unterschiede auf. Bei 0 Impulsen bei der Probenmessung würde man erwarten, dass als primäres Messergebnis 0 herauskommt. Beides ist bei PA1 und PA2 auch der Fall, allerdings berechnet PA2 trotzdem BS, u(BS), UG und OG. Die Norm erlaubt lediglich die Berechnung von BS und u(BS) unabhängig von der Entscheidungsregel $A < A^*$. Das ist wohl einer Präzisierung der Definition der Erkennungsgrenze geschuldet. Zur Erkennungsgrenze steht in der DIN EN ISO 11929-1 u. a. folgendes:

„Wenn das primäre Messergebnis y unter der Erkennungsgrenze y^* liegt, wird entschieden, zu folgern, dass das Ergebnis nicht dem Effekt zugeordnet werden kann. Es kann jedoch nicht gefolgert werden, dass der Effekt nicht vorliegt.“

Außerdem wird in der Norm darauf hingewiesen, dass die Angabe des primären Messergebnisses und seiner zugeordneten Standardunsicherheit entfallen kann, wenn der BS und u(BS) berechnet werden. Die Berechnung von BS und u(BS), auch wenn $A < A^*$ wird aber lediglich erlaubt. In vielen Fällen ist aber dringend davon abzuraten, da es dem besorgten Bürger schwer zu vermitteln ist, dass sein Trinkwasser Plutonium enthält.

Für den hier vorliegenden Fall – primäres Messergebnis kleiner EKG – sieht die Norm keine Berechnungen für UG und OG vor. Somit existiert keine Berechnungsgrundlage.

Tabelle 10: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A04 für U-238, U-235 und U-234.

U-238	PM (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	5,30E-04	5,35E-04	2,13E-04	9,13E-05	4,08E-04	1,27E-04	9,59E-04
UR	5,30E-04	5,35E-04	2,13E-04	9,13E-05	4,08E-04	1,27E-04	9,59E-04
PA1	5,30E-04	5,35E-04	2,13E-04	9,13E-05	4,08E-04	1,27E-04	9,59E-04
PA2	5,31E-04	5,36E-04	2,13E-04	9,15E-05	4,09E-04	1,27E-04	9,60E-04
U-235	PM (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	0			5,46E-05	3,79E-04		
UR	8,62E-05	1,19E-04	7,52E-05	5,46E-05	3,79E-04	7,10E-06	2,86E-04
PA1				5,46E-05	3,79E-04		
PA2	0	1,09E-04	8,24E-05	1,59E-04	5,95E-04	4,28E-06	3,06E-04
U-234		BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	7,81E-04	7,82E-04	2,61E-04	7,91E-05	3,83E-04	2,72E-04	1,30E-03
UR	7,81E-04	7,82E-04	2,61E-04	7,91E-05	3,83E-04	2,72E-04	1,30E-03
PA1	7,81E-04	7,82E-04	2,61E-04	7,91E-05	3,83E-04	2,72E-04	1,30E-03
PA2	7,82E-04	7,84E-04	2,61E-04	7,92E-05	3,84E-04	2,73E-04	1,30E-03

4.3.5 Szenario A05: Uran, mit Messeffekt, mit Blindwertabzug

Bei diesem Szenario wurde das Spektrum von Szenario A01 erneut herangezogen. Hier soll geprüft werden, ob die Software Blindwerte abziehen kann, und wie man dazu vorgehen muss. Sowohl PA1 als auch PA2 ermöglichen den Abzug von Blindwerten, allerdings auf unterschiedliche Art und Weise. Bei PA1 kann man Blindwerte als zusätzliche Verunreinigungen des Tracers einpflegen. Dies hat den Vorteil, dass man den Blindwert über einen großen Zeitraum mitteln kann. Dazu kann man die Blindwertanalysen durch die Software auswerten und durch eine geeignete Tabellenkalkulation protokollieren und statistisch auswerten. Bei PA2 wird zusätzlich zum Untergrundspektrum ein Blindwertspektrum in die Analysensequenz eingebaut und verarbeitet.

Für den abzuziehenden Blindwert wurden für PA1 die in Tabelle 10 angegebenen Werte eingepflegt. Für PA2 wurde ein vergleichbares Spektrum erstellt und eine Auswertung vorgenommen. Da bei der Blindwertmessung derselbe Tracer eingesetzt wurde, muss die Unsicherheit um den Beitrag der Traceraktivität verringert werden oder die Unsicherheit der Traceraktivität auf null gesetzt werden.

Beim Blindwertabzug können keine wesentlichen Unterschiede festgestellt werden. Allerdings fällt auf, dass PA2 tendenziell niedrigere Unsicherheiten angibt als die mit dem zum Nachrechnen verwendeten Modell.

Tabelle 11: Blindwerte für Szenario A05.

	$A_{\text{BW,U-238}}$ (Bq)	$u(A)$ (%)	$A_{\text{BW,U-234}}$ (Bq)	$u(A)$ (%)
PA1	6,23E-04	24,80	9,29E-04	24,00
PA2-Auswertung	6,07E-04	29,31	9,30E-04	23,44
Für EB zu PA2	6,07E-04	28,88	9,30E-04	22,90

Tabelle 12: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennung- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A05 für U-238 und U-234.

U-238	BS (Bq)	$u(\text{BS})$ (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	8,10E-04	2,94E-04	3,71E-04	8,72E-04	2,38E-04	1,39E-03
UR	8,10E-04	2,94E-04	3,71E-04	8,71E-04	2,38E-04	1,39E-03
PA1	8,10E-04	2,95E-04	3,71E-04	8,72E-04	2,38E-04	1,39E-03
PA2	8,24E-04	2,98E-04	3,91E-04	8,96E-04	2,46E-04	1,41E-03
EB PA2	8,27E-04	3,05E-04	3,94E-04	9,16E-04	2,35E-04	1,43E-03
U-234	BS (Bq)	$u(\text{BS})$ (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	1,43E-03	4,07E-04	4,94E-04	1,13E-03	6,34E-04	2,23E-03
UR	1,43E-03	4,07E-04	4,94E-04	1,13E-03	6,34E-04	2,23E-03
PA1	1,43E-03	4,07E-04	4,94E-04	1,13E-03	6,34E-04	2,23E-03
PA2	1,43E-03	3,84E-04	4,77E-04	1,07E-03	6,75E-04	2,18E-03
EB PA2	1,43E-03	4,02E-04	4,82E-04	1,10E-03	6,44E-04	2,22E-03

4.3.6 Szenario A06: Uran, sehr geringer Messeffekt, mit Blindwertabzug

Bei diesem Szenario wurde das Spektrum von Szenario A04 erneut herangezogen. Im Vergleich zu Szenario A05 sind die betrachteten Aktivitäten hier noch einmal deutlich kleiner.

Für den abzuziehenden Blindwert wurden für PA1 die in Tabelle 12 angegebenen Werte eingepflegt. Für PA2 wurde ein vergleichbares Spektrum erstellt und eine Auswertung vorgenommen. Da hier derselbe Tracer eingesetzt wurde, muss die Unsicherheit um den Beitrag der Traceraktivität verringert werden.

Vergleichbar mit Szenario A05 können auch bei A06 keine wesentlichen Unterschiede innerhalb der einzelnen Berechnungsverfahren festgestellt werden. Die Programme führen die Berechnungen richtig aus, aber verwerfen nicht die vermeintlichen Ergebnisse, bei denen festzustellen war, dass der Messeffekt nicht vorliegt.

Tabelle 13: Blindwerte für Szenario A06.

	$A_{\text{BW,U-238}}$ (Bq)	$u(A)$ (%)	$A_{\text{BW,U-234}}$ (Bq)	$u(A)$ (%)
PA1	1,00E-04	40,00	5,00E-04	25,00
PA2-Auswertung	9,78E-05	44,49	5,02E-04	19,50
Zum Nachrechnen	9,78E-05	44,21	5,02E-04	18,85

Tabelle 14: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennung- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A06 für U-238 und U-234.

U-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	4,44E-04	2,08E-04	1,86E-04	6,04E-04	6,66E-05	8,68E-04
UR	4,44E-04	2,08E-04	1,86E-04	6,04E-04	6,66E-05	8,68E-04
PA1	4,44E-04	2,08E-04	1,86E-04	6,04E-04	6,66E-05	8,68E-04
PA2	4,49E-04	2,08E-04	1,87E-04	6,03E-04	6,87E-05	8,73E-04
EB PA2	4,46E-04	2,08E-04	1,87E-04	6,06E-04	6,72E-05	8,71E-04
U-234	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB			4,02E-04	1,06E-03		
UR	3,69E-04	2,29E-04	4,02E-04	1,06E-03	2,33E-05	8,74E-04
PA1	3,69E-04	2,29E-04	4,02E-04	1,06E-03	2,33E-05	8,74E-04
PA2	3,58E-04	2,19E-04	3,78E-04	9,91E-04	2,35E-05	8,40E-04
EB PA2			3,80E-04	1,01E-03		

4.3.7 Szenario A07 und A08: Uran, unterschiedlich hoher Messeffekt, ohne Tracer

Bei diesen Szenarien wird auf den Einsatz eines Ausbeutetracers verzichtet. Stattdessen wird mit Hilfe der Messeffizienz der Alphakammer und einer geschätzten chemischen Ausbeute die Aktivität berechnet. Für das Beispiel beträgt die Kammereffizienz 0,2153 und die chemische Ausbeute 0,75. Die Gesamteffizienz ist somit 0,1615. Dieser wird eine relative Unsicherheit von 15 % zugewiesen. Für Szenario A07 wird auf das Spektrum von Szenario A01 und für Szenario A08 auf das Spektrum von Szenario A04 zurückgegriffen. Bei PA2 muss beachtet werden, dass man für die Effizienzbestimmung nur eine Effizienz mit ihrer Unsicherheit eingibt. Gibt man beispielsweise für die Energien der Uran-Nuklide U-238, U-234 und U-232 Effizienzen ein, so verringert sich die Unsicherheit der Effizienz um den Faktor Wurzel(3).

Tabelle 15: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A07 und A08 für U-238.

A07 / U-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	1,39E-03	3,10E-04	5,95E-05	2,34E-04	7,77E-04	1,99E-03
UR	1,39E-03	3,10E-04	5,95E-05	2,34E-04	7,77E-04	1,99E-03
PA1	1,39E-03	3,10E-04	5,95E-05	2,34E-04	7,77E-04	1,99E-03
PA2	1,39E-03	3,10E-04	5,95E-05	2,34E-04	7,77E-04	1,99E-03
A08 / U-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	4,57E-04	1,88E-04	7,77E-05	3,64E-04	9,87E-05	8,33E-04
EB2 für PA1	4,55E-04	1,78E-04	7,77E-05	3,41E-04	1,12E-04	8,09E-04
UR	4,57E-04	1,88E-04	7,77E-05	3,64E-04	9,87E-05	8,33E-04
PA1	4,55E-04	1,78E-04	7,77E-05	3,41E-04	1,12E-04	8,09E-04
PA2	4,57E-04	1,88E-04	7,77E-05	3,64E-04	9,87E-05	8,33E-04

Bei Szenario A08 wurde bei PA1 vergessen, die Unsicherheit der Effizienz einzugeben. Daher wurde hier eine zweite EB (EB 2) durchgeführt, um die Ergebnisse von PA1 zu überprüfen. Da die Software leider nicht routinemäßig in unserem Hause eingesetzt wird, konnte das nicht mehr behoben werden. Die Ergebnisse der Softwarepakete stimmen hier wiederum sehr gut mit den eigenen Berechnungen überein.

4.3.8 Szenario A09 und A10: Polonium, unterschiedlich hoher Messeffekt

Bei diesen Szenarien ist das betrachtete Nuklid Po-210. Beide Szenarien unterscheiden sich bezüglich der Konzentration des Analyten deutlich. Während bei A09 eine gut messbare Menge Po-210 enthalten ist, erhält man bei A10 ein negatives primäres Messergebnis. Folgende Messdaten wurden aufgezeichnet:

Tabelle 16: Aufgenommene Messdaten für A09 und A10.

	Messdauer (s)	Po-210 (Impulse)	Po-209 (Impulse)
Probe, A09	78555	943	826
Probe, A10	84004	9	391
Untergrund	842414	110	124

Tabelle 17: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A09 und A10 für Po-210.

A09	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
PA1	4,59E-02	3,26E-03	2,71E-04	6,83E-04	3,96E-02	5,23E-02
EB	4,59E-02	3,26E-03	2,71E-04	6,83E-04	3,96E-02	5,23E-02
UR	4,59E-02	3,26E-03	2,71E-04	6,83E-04	3,96E-02	5,23E-02
PA2	4,60E-02	3,24E-03	2,71E-04	6,83E-04	3,96E-02	5,23E-02
A10	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
PA1			3,02E-04	7,59E-04		
EB			3,02E-04	7,59E-04		
UR	1,03E-04	8,41E-05	3,02E-04	7,59E-04	3,45E-06	3,12E-04
PA2	1,22E-04	9,61E-05	2,99E-04	7,49E-04	4,40E-06	3,57E-04

Bei Szenario A09 erhält man eine sehr gute Übereinstimmung bei allen Ergebnissen. Bei Szenario A10 bleibt wiederum festzustellen, dass UG und OG berechnet werden, obwohl deren Berechnung in der Norm nicht vorgesehen ist.

4.3.9 Szenario A11 und A12: Polonium, mit Messeffekt, Peaküberlappung

Bei diesen beiden Szenarien wurden schlechte Spektren aufgenommen. Da die Peaks ineinanderlaufen, müssen die Spektren gefittet werden. Führt man keinen Fit durch, so wird der Peak mit der geringeren Energie systematisch überbewertet. Diese systematische Abweichung muss korrigiert werden. A11 und A12 unterscheiden sich auch anhand der Qualität der Spektren deutlich. Durch den 10-fach höheren Peak von Po-210 bei A12 erhöht das Low-Tail

von Po-210 den Untergrund unter dem Po-209-Peak deutlicher. Um beurteilen zu können, wie gut die Programme hier arbeiten, wurden ein manueller Fit und ein programmgestützter Fit vorgenommen. Beide Fitmethoden basieren auf der Methode der kleinsten Quadrate und nutzen die in DIN EN ISO 11929-3:2021-11 angegebene Formel um die Spektren anzupassen. Beim manuellen Fit werden in Excel mit der Solver-Funktion die Peaks schrittweise angepasst. Beim programmgestützten Fit wird die Fitfunktion simultan über alle Peaks angepasst. Die Messdaten der Szenarien A11 und A12 sind in Tabelle 18 aufgelistet, wobei sich Auswertung a auf PA1, Auswertung b auf den manuellen Fit und Auswertung c auf den programmgestützten Fit beziehen.

Tabelle 18: Aufgenommene Messdaten für A11 und A12.

	Messdauer (s)	Po-210 (Impulse)	Po-209 (Impulse)	Po-210/Po-209
A11-a, PA1	170804	2016,8	1030,5	1,96
A11-b, Fit manuell		1648	805	2,05
A11-c, Fit Programm		2182	1110	1,97
A12-a, PA1	320174	23663,7	2436,3	9,71
A12-b, Fit manuell		25335,6	2007	12,62
A12-c, Fit Programm		28946,4	2189,6	13,22
Untergrund	842414	110	124	

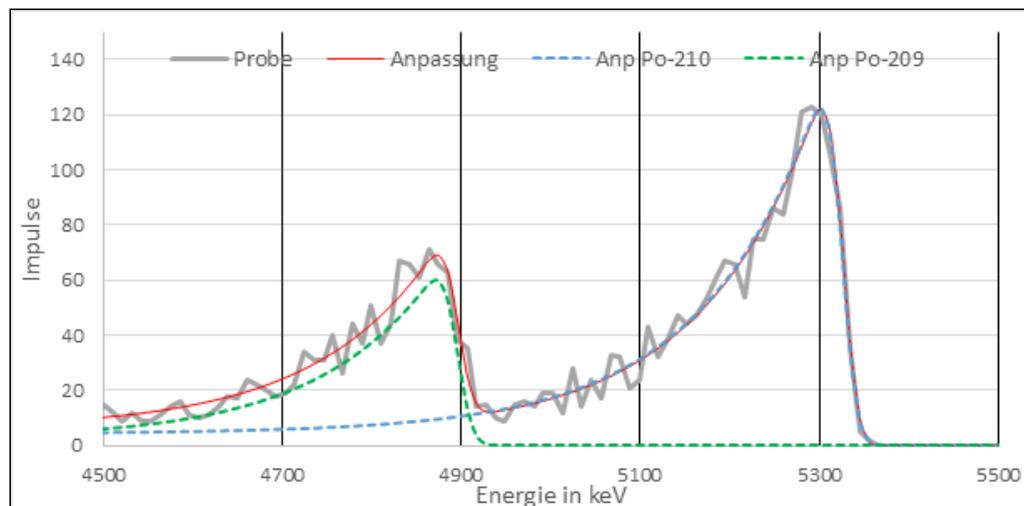


Abbildung 2: Aufgenommenes Spektrum bei Szenario A11 mit dem manuellen Fit (rot) und den Einzelkomponentenspektren (grün und blau).

Einen sinnvollen Fit konnte man bei den zu untersuchenden Softwarepaketen nur mit PA1 erhalten. Bei PA2 war dies nicht möglich, da das Programm hauptsächlich auf gaußartige Peaks ausgelegt ist, was bei Alphaspektren nicht sinnvoll ist. Die Ergebnisse von PA1 werden mit Excel und UncertRadio anhand der Ausgaben von PA1 nachvollzogen. Die Impulszahlen der manuellen und automatischen Peakfits werden in das Excelsheet für die eigenen Berechnungen übertragen und ausgewertet.

Tabelle 19: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A11 und A12 für Po-210.

A11	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
PA1	5,99E-02	4,12E-03	2,56E-04	6,00E-04	5,18E-02	6,80E-02
UR-a	5,99E-02	3,90E-03	2,56E-04	5,99E-04	5,23E-02	6,75E-02
EB-a	5,99E-02	3,90E-03	2,56E-04	5,99E-04	5,23E-02	6,75E-02
EB-b	6,28E-02	7,61E-03	3,29E-04	7,93E-04	4,79E-02	7,77E-02
EB-c	6,00E-02	4,76E-03	2,37E-04	5,56E-04	5,07E-02	6,93E-02
A12	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
PA1	3,01E-01	1,69E-02	1,59E-04	3,55E-04	2,67E-01	3,34E-01
UR-a	3,01E-01	1,69E-02	1,59E-04	3,55E-04	2,67E-01	3,34E-01
EB-a	3,01E-01	1,69E-02	1,59E-04	3,55E-04	2,67E-01	3,34E-01
EB-b	3,92E-01	3,70E-02	1,94E-04	4,40E-04	3,20E-01	4,65E-01
EB-c	4,10E-01	2,49E-02	1,77E-04	3,97E-04	3,61E-01	4,59E-01

Für die Vergleichsberechnung durch EB und UR waren die Unsicherheit der Fitparameter und zusätzliche Unsicherheiten des benutzten Modells unbekannt und mussten vernachlässigt werden. Beim Nachrechnen der Ausgaben von PA1 fällt auf, dass PA1 höhere Unsicherheiten angibt. Wahrscheinlich werden Unsicherheiten der Fitparameter des verwendeten Anpassungsmodells berücksichtigt, die dann aber nicht ausgegeben werden. Für das Szenario A11 ergeben sich bezüglich des besten Schätzers gute Übereinstimmungen zum manuellen Fit und zum Fit mittels Rechenprogramm. Größere Abweichungen sind bei den Erkennungs- und Nachweisgrenzen festzustellen. Dies hängt damit zusammen, wie jeweils die Flächen unter den Einzelpicks bestimmt werden. Idealerweise müsste der Integrationsbereich so gewählt werden, wie die ROI im Untergrundspektrum gesetzt ist. In DIN EN ISO 11929-3 wird im informativen Anhang auf die Anwendung von Entfaltungstechniken bei der Alphaspektrometrie eingegangen. Dort werden auch die Probleme bezüglich des Aufstellens der Unsicherheitsfunktion erläutert. Problematisch ist, dass PA1 auch für Po-209 Erkennungs- und Nachweisgrenzen berechnet, die denen für Messungen ohne Fit entsprechen. Das ist sehr zweifelhaft, da gerade bei A12 ein sehr hoher zusätzlicher Untergrundbeitrag durch das Tailing von Po-210 im Messbereich von Po-209 festgestellt werden kann.

Beim Szenario A12 stößt die Fitfunktion von PA1 an ihre Grenzen. Durch die schlechte Qualität des Spektrums wird mindestens ein zweites exponentielles Tailing benötigt. Am Fit, den das Programm PA1 zeigt (Abbildung 3 rechts), ist aber leicht zu erkennen, dass der Fit unbrauchbar ist und andere Methoden der Auswertung herangezogen werden müssen. Mit dem manuellen Fit und dem programmgestützten Fit (Abbildung 3 links) konnten hingegen plausible Anpassungen vorgenommen werden. Das Integral des höher energetischen Peaks (Po-210) in der ROI von Po-209 beträgt 372 Impulse gemäß des manuellen Fits, welcher durch PA1 nicht korrekt berücksichtigt wird, wodurch sich die Peakflächenverhältnisse von Po-210/Po-209 von 12,6 auf 9,7 verringert (siehe Tabelle 18).

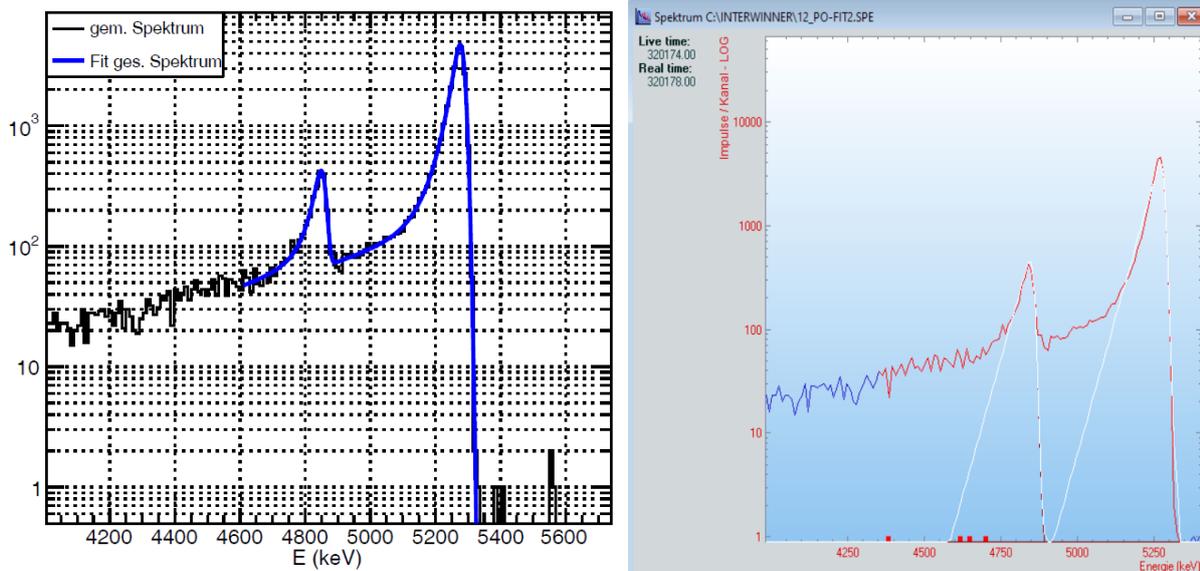


Abbildung 3: Fit des Spektrums von Szenario A12 mit dem automatischen Programm (links) und der Software PA1 (rechts).

4.3.10 Szenario A13 und A14: Plutonium, unterschiedlich hoher Messeffekt, isotopenreiner Tracer

Tabelle 20: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A13 und A14 für Pu-238 und Pu-239/240.

A13 - Pu-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	5,18E-02	4,94E-03	1,16E-04	7,72E-04	4,21E-02	6,15E-02
UR	5,18E-02	4,91E-03	1,16E-04	7,72E-04	4,22E-02	6,14E-02
PA1	5,18E-02	4,94E-03	1,16E-04	7,72E-04	4,21E-02	6,15E-02
PA2	5,18E-02	4,91E-03	1,16E-04	7,72E-04	4,22E-02	6,14E-02
A13 - Pu-239/240	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	5,35E-02	5,07E-03	1,34E-04	8,09E-04	4,36E-02	6,35E-02
UR	5,35E-02	5,01E-03	1,34E-04	8,08E-04	4,37E-02	6,34E-02
PA1	5,35E-02	5,07E-03	1,34E-04	8,09E-04	4,36E-02	6,35E-02
PA2	5,36E-02	5,04E-03	1,16E-04	7,72E-04	4,37E-02	6,34E-02
A14 - Pu-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB			4,83E-05	2,04E-04		
UR	2,15E-04	9,23E-05	4,83E-05	2,04E-04	4,17E-05	4,01E-04
PA1	2,15E-04	9,19E-05	4,83E-05	2,02E-04	4,22E-05	4,00E-04
PA2	2,16E-04	9,23E-05	4,83E-05	2,04E-04	4,18E-05	4,01E-04
A14 - Pu-239/240	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB			5,57E-05	2,19E-04		
UR	3,76E-05	2,69E-05	5,57E-05	2,19E-04	1,66E-06	1,00E-04
PA1			5,57E-05	2,17E-04		
PA2	2,60E-05	2,09E-05	4,83E-05	2,04E-04	8,96E-07	7,76E-05

Bei diesen Szenarien werden die Pu-Isotope bestimmt und als Tracer wird sauberes (isotopenreines) Pu-242 eingesetzt. Bei Szenario A13 sind messbare Aktivitäten vorhanden, wohingegen bei A14 kein bzw. fast kein Messeffekt vorliegt.

Im Großen und Ganzen stimmen die Ergebnisse überein. Bei PA2 ist allerdings für das Nuklid Pu-239/240 eine Abweichung festzustellen. Sowohl bei A13 als auch A14 wird der Untergrund für die Berechnung der Erkennungsgrenze nicht richtig berechnet. Während die Auswertung des Untergrundspektrums noch 4 Impulse für die ROI von Pu-239/240 zeigt, werden beim UG-Abzug nur 3 Impulse berücksichtigt. Die Ursache ist unklar.

4.3.11 Szenario A15: Plutonium, mit Messeffekt, Peaküberlappung, isotopenreiner Tracer

Bei diesem Szenario geht es wiederum um die Bestimmung der Pu-Isotope. Das Spektrum zeigt eine Überlappung aller Pu-Isotope miteinander. Die Ergebnisse von PA1 werden wieder mit zwei weiteren Fitmöglichkeiten (manuell, automatisch) verglichen.

Tabelle 21: Aufgenommene Messdaten für A15.

	Messdauer (s)	Pu-242 (Impulse)	Pu-239/240 (Impulse)	Pu-238 (Impulse)
A15-a, PA1	241570,11	612,4	907,3	1804,1
A15-b, Fit manuell		736,685	1005,031	1880,823
A15-c, Fit auto		687,662	940,677	1763,5
Untergrund	858262,86	2	4	3

Tabelle 22: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A15 für Pu-238 und Pu-239/240.

A15 - Pu-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
PA1	4,43E-02	3,38E-03			3,76E-02	5,09E-02
UR	4,42E-02	3,09E-03	4,20E-05	1,52E-04	3,82E-02	5,03E-02
EB	4,42E-02	3,09E-03	4,20E-05	1,52E-04	3,82E-02	5,03E-02
EB-b,manuell	3,83E-02	3,88E-03	3,49E-05	1,28E-04	3,07E-02	4,59E-02
EB-c, auto	3,85E-02	2,65E-03	3,74E-05	1,35E-04	3,33E-02	4,37E-02
Pu-239/240	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
PA1	2,22E-02	1,83E-03			1,87E-02	2,58E-02
UR	2,22E-02	1,64E-03			1,90E-02	2,54E-02
EB	2,22E-02	1,64E-03			1,90E-02	2,54E-02
EB-b,manuell	2,05E-02	2,14E-03			1,63E-02	2,47E-02
EB-c, auto	2,05E-02	1,48E-03			1,76E-02	2,34E-02

Die Berechnungen von PA1 bezüglich des besten Schätzers stimmen mit denen per Hand überein. Da PA1 zusätzliche Unsicherheiten des Fits nicht ausgibt, berechnet PA1 höhere Unsicherheiten. Erkennungs- und Nachweisgrenzen werden von PA1 nicht angegeben, obwohl das für die Polonium-Isotope noch der Fall war. Die Ursache ist hier unklar. Die korrekte Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen bei überlappenden Peaks setzt voraus, dass man Unsicherheiten des Anpassungsmodells gut abschätzen kann.

4.3.12 Szenario A16 und A17: Plutonium, mit Messeffekt, kontaminierter Tracer, Variation der Tracermenge

Bei den Szenarien A16 und A17 geht es wiederum um die Bestimmung der Plutoniumisotope, aber hier mit einem kontaminierten Pu-242-Tracer. Da nicht alle Laboratorien einen isotonenreinen Tracer zur Verfügung haben, beschäftigen sich zwei Szenarien damit. Bei kontaminiertem Tracer muss eine Blindwertanalyse des Tracers durchgeführt werden. Zusätzlich ist zu beachten, dass diese Tracer oftmals auch Pu-241 enthalten, welches Am-241 nachbildet. Werden die Transurane aus einem Ansatz bestimmt, so muss die Kontamination des Pu-Tracers mit Am-241 bei der Bestimmung von Am-241 berücksichtigt werden.

Tabelle 23: Aufgenommene Messdaten für A16 und A17.

	Messdauer (s)	Pu-242 (Impulse)	Pu-239/240 (Impulse)	Pu-238 (Impulse)
A16	300000	5822	93	818
A17	300000	1462	25	209
Tracer BW	300000	7006	97	792
Untergrund	858263	2	4	3

Bei den untersuchten Softwarepaketen ist die Berücksichtigung dieser Kontamination unterschiedlich zu handhaben. Bei PA1 werden die Aktivitäten als Tracerverunreinigung zusammen mit ihren Unsicherheiten eingegeben. Bei PA2 wird das Spektrum als Blindwertspektrum eingelesen. Durch dieses unterschiedliche Vorgehen der Software, unterscheiden sich die Eingaben und können zu unterschiedlichen Ergebnissen führen. Daher wurden die eigenen Berechnungen für PA2 mit den exakten Eingangsinformationen erneut durchgeführt. Dabei wurde mit Auswertemodell 1 (EB2 Modell 1) und mit Auswertemodell 2 (EB3 Modell 2) gerechnet.

Tabelle 24: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A16 für Pu-238 und Pu-239/240.

A16 - Pu-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	2,58E-03	1,02E-03	1,55E-03	3,33E-03	6,19E-04	4,61E-03
UR	2,58E-03	1,02E-03	1,55E-03	3,33E-03	6,19E-04	4,61E-03
PA1	2,58E-03	1,02E-03	1,55E-03	3,33E-03	6,19E-04	4,62E-03
PA2	2,41E-03	6,25E-04	9,56E-04	1,97E-03	1,19E-03	3,64E-03
EB2 Modell 1	2,58E-03	9,02E-04	1,29E-03	2,81E-03	8,23E-04	4,36E-03
EB3 Modell 2	2,57E-03	6,32E-04	9,47E-04	1,96E-03	1,33E-03	3,81E-03
A16 - Pu-239/240	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB			3,51E-04	7,69E-04		
UR			3,51E-04	7,69E-04		
PA1	2,76E-04	1,74E-04	3,51E-04	7,69E-04	1,69E-05	6,62E-04
PA2	2,54E-04	1,58E-04	3,18E-04	6,83E-04	1,60E-05	6,03E-04
EB2 Modell 1	2,66E-04	1,67E-04	3,35E-04	7,37E-04	1,63E-05	6,36E-04
EB3 Modell 2	2,57E-04	1,59E-04	3,17E-04	6,84E-04	1,64E-05	6,07E-04

Die Ergebnisse von PA1 können genau nachvollzogen werden. Bei PA2 stellt sich heraus, dass die beiden Modelle unterschiedliche Ergebnisse bezüglich der Messunsicherheiten, der Erkennungs- und Nachweisgrenzen ergeben. PA2 gibt eine relative Standardmessunsicherheit von Pu-238 in Höhe von 25,9 % aus. Mit Modell 1 erhält man mit den gleichen Eingaben 35,0 % und mit Modell 2 erhält man 24,6 %. Es kann festgestellt werden, dass PA2 korrekt rechnet.

Tabelle 25: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A17 für Pu-238.

A17 - Pu-238	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	7,00E-04	3,18E-04	4,92E-04	1,08E-03	1,14E-04	1,35E-03
UR	7,02E-04	3,19E-04	4,92E-04	1,08E-03	1,15E-04	1,35E-03
PA1	7,02E-04	3,19E-04	4,92E-04	1,08E-03	1,15E-04	1,35E-03
PA2	6,59E-04	2,54E-04	3,89E-04	8,28E-04	1,69E-04	1,17E-03
EB2 Modell 1	6,97E-04	2,99E-04	4,44E-04	9,86E-04	1,35E-04	1,30E-03
EB3 Modell 2	6,90E-04	2,59E-04	3,85E-04	8,30E-04	1,89E-04	1,20E-03

Bei Szenario A17 werden prinzipiell die gleichen Beobachtungen gemacht wie bei Szenario A16. Durch die Verringerung des Tracereinsatzes kann eine deutliche Verringerung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen erreicht werden, da die zugegebene Kontamination bei Verringern der Tracerzugabe ebenfalls verringert wird. Daher sollte man bei der Analyse nur diejenige Tracermenge zusetzen, die ausreichend ist, um zufriedenstellende Zählunsicherheiten des Tracers zu erzielen.

4.3.13 Szenario A18 und A19

Bei den Szenarien A18 und A19 werden die Thoriumisotope jeweils mit Tracer bestimmt. Bei A19 liegt dabei eine Kontamination mit Po-210 vor

Tabelle 26: Aufgenommene Messdaten für A18 und A19.

	Messdauer (s)	Th-232 (Impulse)	Th-230 (Impulse)	Th-229 (Impulse)	Th-228 (Impulse)
A18	71485,77	126	56	138	201
A19	271956,82	71	126	1154	60
Untergrund	865844,08	1	4	3	8

Für Szenario A18 ergeben die Auswertungen Folgendes:

Die Ergebnisse stimmen im Allgemeinen sehr gut überein. Bei Th-230 wurden mit PA2 geringfügig niedrigere Werte für EKG und NWG erhalten, da in der betrachteten ROI ein Impuls weniger war. Dabei handelt es sich nicht um eine Abweichung. Geringe Differenzen liegen in der Natur der Sache, sofern die ROIs manuell gesetzt werden.

Tabelle 27: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A18 für Th-232, Th-230 und Th-228.

Th-232	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	2,00E-02	2,68E-03	7,82E-05	6,03E-04	1,48E-02	2,53E-02
UR	2,00E-02	2,68E-03	7,82E-05	6,03E-04	1,48E-02	2,53E-02
PA1	2,00E-02	2,68E-03	7,82E-05	6,03E-04	1,48E-02	2,53E-02
PA2	2,00E-02	2,67E-03	7,82E-05	6,03E-04	1,48E-02	2,53E-02
Th-230	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	8,86E-03	1,49E-03	1,75E-04	8,04E-04	5,95E-03	1,18E-02
UR	8,86E-03	1,49E-03	1,75E-04	8,03E-04	5,95E-03	1,18E-02
PA1	8,86E-03	1,49E-03	1,75E-04	8,04E-04	5,95E-03	1,18E-02
PA2	8,87E-03	1,48E-03	1,57E-04	7,65E-04	5,97E-03	1,18E-02
Th-228	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	3,20E-02	3,92E-03	2,22E-04	9,02E-04	2,43E-02	3,97E-02
UR	3,20E-02	3,92E-03	2,22E-04	9,02E-04	2,43E-02	3,97E-02
PA1	3,20E-02	3,92E-03	2,23E-04	9,02E-04	2,44E-02	3,97E-02
PA2	3,20E-02	3,89E-03	2,22E-04	9,01E-04	2,44E-02	3,96E-02

Bei Szenario A19 liegt ein Spezialfall vor. Bei der Abtrennung der Thoriumisotope wurde Po-210 nicht vollständig abgetrennt. Po-210 (5304 keV) überlappt dabei mit Th-228 (5423 keV mit 73,4 % und 5340 keV mit 26,0 %). Bei guter Auflösung des Spektrums kann der Auswertebereich so verändert werden, dass nur der Hauptpeak von Th-228 ausgewertet wird. In Abbildung 4 wird das Spektrum des Szenarios A19 gezeigt. Die ROIs der Nuklide Th-232, Th-230, Th-229 und Th-228 (von links nach rechts) sind jeweils rot markiert. Zwischen Th-229 und Th-228 erkennt man Po-210 (schwarzer Peak), der die Nebenlinie von Th-228 überdeckt. Durch die Anpassung der ROI stört das Po-210 nicht die Analyse. Zur Auswertung muss dann in der verkürzten ROI eine Emissionswahrscheinlichkeit von 81 % berücksichtigt werden. Zum Vergleich wird in Abbildung 4 (rechts) ein Referenzspektrum gezeigt, dass keine Po-210-Störung aufweist.

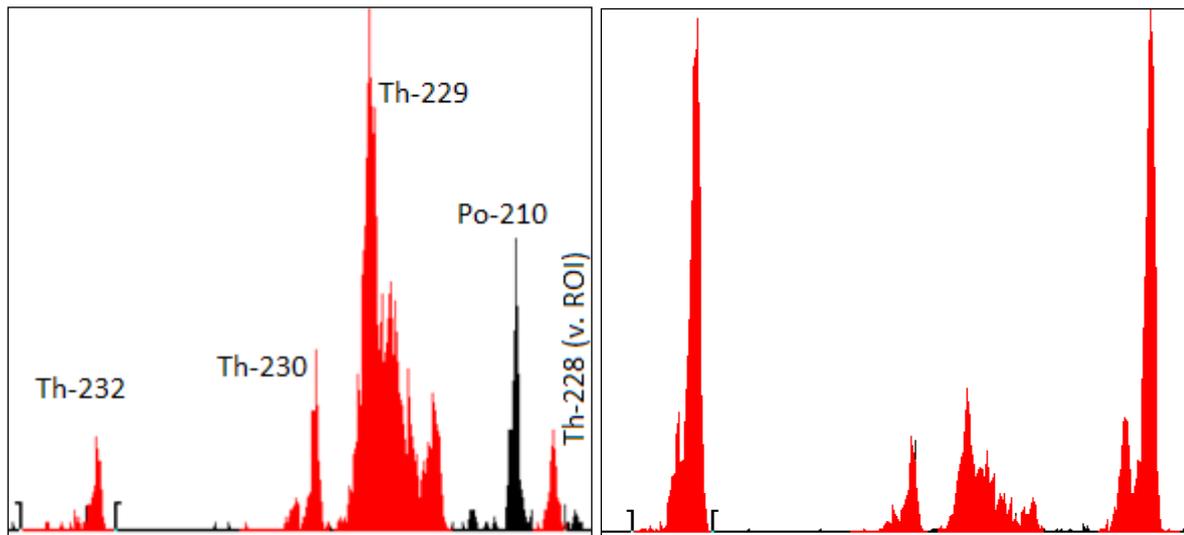


Abbildung 4: Spektrum für Szenario A19 (links) und ein Referenzspektrum (rechts) mit den rot markierten ROIs der einzelnen Nuklide.

Tabelle 28: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A19 für Th-232, Th-230 und Th-228

Th-232	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	1,32E-03	1,78E-04	2,01E-05	9,25E-05	9,76E-04	1,67E-03
UR	1,32E-03	1,78E-04	2,01E-05	9,25E-05	9,76E-04	1,67E-03
PA1	1,35E-03		2,01E-05	9,59E-05		
PA2	1,34E-03	1,79E-04	2,01E-05	9,25E-05	9,93E-04	1,69E-03
Th-230	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	2,37E-03	2,57E-04	4,50E-05	1,43E-04	1,87E-03	2,87E-03
UR	2,37E-03	2,57E-04	4,50E-05	1,43E-04	1,87E-03	2,87E-03
PA1	2,37E-03		4,50E-05	1,48E-04		
PA2	2,38E-03	2,56E-04	4,03E-05	1,33E-04	1,87E-03	2,88E-03
Th-228	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	1,37E-03	2,00E-04	5,54E-05	1,76E-04	9,78E-04	1,76E-03
UR	1,37E-03	2,00E-04	5,54E-05	1,76E-04	9,78E-04	1,76E-03
PA1	1,37E-03		5,55E-05	1,83E-04		
PA2	1,37E-03	1,99E-04	5,54E-05	1,76E-04	9,78E-04	1,76E-03

Bei der Bearbeitung des zu untersuchenden Spektrums mittels PA1 wurde fälschlicherweise Th-232 als Tracer eingetragen. Die Werte für BS, EKG und NWG wurden – sofern möglich – umgerechnet. Dazu wurde der Korrekturfaktor für den eigentlichen Tracer Th-229 berechnet und die Ergebnisse der anderen Nuklide mit diesem Faktor multipliziert. Für die Unsicherheiten ist dies nicht einfach möglich. Da wir das Programm nicht selbst im Haus benutzen, ließ sich das nicht ohne größeren Aufwand beheben. Bei beiden Softwareprogrammen ist die Umsetzung dieses Szenarios einfach möglich. Dazu muss lediglich eine weitere Nuklidbibliothek erstellt werden, in der die Nachweiswahrscheinlichkeit angepasst ist, und das Untergrundspektrum, in dem die kürzere ROI berücksichtigt wird.

4.3.14 Szenario A20: Radium-224, Untersuchung Abklingkorrektur

Bei diesem Szenario soll festgestellt werden, ob die Abklingkorrekturen richtig durchgeführt werden. Dazu wurde ein Spektrum von Ra-224 (Halbwertszeit 3,632 Tage) analysiert. Die Zeit zwischen Bezugszeitpunkt und Start der Messung beträgt 3 d (259200 s) und die Messdauer 360000 s. Ein Untergrundspektrum wurde nicht aufgenommen.

Tabelle 29: Ermittelte Werte für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, der Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie den Grenzen des Überdeckungsintervalls beim Szenario A20 für Ra-224

Ra-224	BS (Bq)	u(BS) (Bq)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	4,00E-02	1,14E-03	6,64E-05	2,10E-04	3,77E-02	4,22E-02
UR	3,99E-02	1,14E-03	6,64E-05	2,10E-04	3,77E-02	4,22E-02
PA1	4,00E-02	1,14E-03	6,65E-05	2,10E-04	3,77E-02	4,22E-02
PA2	4,00E-02	1,15E-03	4,70E-05	1,71E-04	3,77E-02	4,22E-02

Tabelle 30: dT zum Erreichen von 1 % Unsicherheit bei der Abklingkorrektur für typische Radionuklide.

Nuklid	HWZ	u(HWZ)	dT für 1 %	dT für 1 %
	(a)	(a)	(a)	(HWZ)
Am-241	432,6	0,6	4500	10,40
pu-239	24110	30	279000	11,57
Pu-238	87,7	0,1	1100	12,54
Th-228	1,9116	0,0016	32,95	17,24
Pb-210	22,2	0,22	32,32	1,456
Cs-137	30,08	0,09	145	4,820
Ni-63	101,2	1,5	98,5	0,973
H-3	12,32	0,02	109,49	8,887
Nuklid	(d)	(d)	(d)	(HWZ)
Po-210	138,376	0,002	137000	990,1
Ra-224	3,6316	0,0023	82,73	22,78
Rn-222	3,8222	0,0009	234,2	61,27
Co-60	1925,28	0,14	381974	198,4

Die Softwarepakete setzen die Abklingkorrekturen offenbar korrekt um. Für die eigenen Berechnungen wurde angenommen, dass der Untergrund keine Impulse aufweist und die Messdauer des Untergrunds und der Probe gleich sind. Die eigenen Berechnungen liefern das gleiche Ergebnis wie PA1. Bei PA2 wird allerdings eine niedrigere Erkennungs- und Nachweisgrenze ausgegeben, wie dies schon in anderen Szenarien festzustellen war, bei denen keine Untergrundimpulse registriert worden sind. Einschränkend wird festgestellt, dass PA1 die Unsicherheit der Abklingkorrektur nicht in die Unsicherheitenbetrachtung einbezieht. In Tabelle 30 wird gezeigt, ab welcher Zeitendifferenz dT von Bezugsdatum und Messdatum der Abklingkorrekturfaktor f_1 eine relative Standardunsicherheit von 1 % aufweist. Man erkennt dabei, dass dT entweder sehr groß sein muss oder sehr viele Halbwertszeiten zurückgerechnet werden müssen, damit die Standardunsicherheit mindestens 1% beträgt. Somit ist eine fehlende Berücksichtigung der Unsicherheit praktisch unbedeutend.

4.3.15 Prüfung von Manuals weiterer Software

Da für die Alphaspektrometrie nur zwei Softwarepakete für die weitere Untersuchung im Rahmen dieses Vorhabens in Frage kamen und diese Zahl geringer ist als die zunächst angedachte Anzahl von drei Softwarepaketen, wurden mit dem Auftraggeber gemäß Leistungsbeschreibung alternative Leistungen vereinbart. In diesem Zusammenhang sollte die Prüfung von Manuals weiterer Softwareprodukte für die Alphaspektrometrie hinsichtlich der Auswertung nach DIN EN ISO 11929 erfolgen. Neben den in diesem Vorhaben untersuchten Softwareprodukten hat das Programm AlphaVision von Ortec/Ametek eine gewisse Verbreitung.

Aktuell wird die Version 7.0 vertrieben [20]. Die Software verwendet folgende Auswertemethoden:

- Peaksuche/Peak-Fit: Einsatz der Mariscotti-Methode (zweite Ableitung des Spektrums) oder der Top-Hat-Korrelation, Peak-Interferenz-Korrektur, Verwendung von ROIs (Regions of Interest) mit automatischer Korrektur einer spektralen Verschiebung basierend auf der Energie des "besten Peaks" (in der Regel des Tracer-Peaks) oder aller Peaks im Spektrum und interaktive ROI-Anpassung zur Optimierung des Peak-Fits.
- Aktivitätsberechnungen: absolut (kein Tracer), Tracer-Wiederfindungskorrektur, sonstige radiochemische Ausbeutekorrektur, Untergrund- und Blindwertabzug (z. B. Chemikalienblindwert), Messunsicherheitsberechnung unter Berücksichtigung des Fehlerfortpflanzungsgesetzes, hier noch frequentistisch ausgedrückt mit der Unsicherheit der Aktivität sowie zusätzlichen zufälligen und systematischen Unsicherheiten
- Nachweisgrenzenberechnungen: Man kann auswählen zwischen den Berechnungsformeln nach ANSI N13.30 [21], Currie [22] oder KTA [23] (dies ist im Manual nicht erwähnt, jedoch in der aktuellen Broschüre zum Produkt), wobei entsprechenden Korrekturen (Verdünnung, Skalierung, Tracer- und radiochemische Wiederfindung) Berücksichtigung finden.

Die Software erlaubt in der vorliegenden Version jedoch keine Berechnung der charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929.

4.3.16 Zusammenfassung

Die Softwarepakete PA1 und PA2 sind jeweils geeignet, alphaspektrometrische Messungen auszuwerten. PA1 und PA2 bieten zahlreiche Möglichkeiten an, alle notwendigen Auswerteparameter einzustellen. Es konnten alle Verfahren mit der Berechnung über einen Tracer oder die Kammereffizienz dargestellt werden. Auch der Abzug von Blindwerten oder die Berücksichtigung von Kontaminationen des Tracers waren unproblematisch. Lediglich der Fit von Alphaspektren mit deutlichem Low-Tail konnte nur von PA1 umgesetzt werden. Auf die Umsetzung von Verfahren mit Probenteilung wurde verzichtet, da die Programmpakete ohnehin mit Kontaminationen im Tracer umgehen können, und dies damit überflüssig erschien.

Folgende Aspekte sind bei den Untersuchungen aufgefallen:

Problematisch erscheint der Umgang mit 0 Impulsen im Spektrum der Probe und/oder dem Untergrund. Insbesondere UncertRadio liefert hier ein unplausibles Ergebnis ab, wenn sowohl in der Probenmessung als auch im Untergrund keine Impulse verzeichnet werden. Normalerweise würde man hier als primäres Messergebnis 0 erwarten. Im untersuchten Szenario kommt allerdings ein Wert größer der Erkennungsgrenze heraus. Die Norm geht zwar auf den Fall ein, wie mit 0 Impulsen umzugehen ist, die genaue Vorgehensweise bleibt aber schwammig. Entsprechend der Norm soll im Falle „ $n=0$ “ die Zählrate auf $1/t$ und die Unsicherheit der Zählrate auf $1/t^2$ gesetzt werden. Ob diese manipulierten Messdaten auch für die Berechnung des primären Messergebnisses verwendet werden sollen, wird in der Norm nicht beschrieben. Bei den untersuchten Softwareprodukten PA1 und PA2 wird das negiert und man erhält für das primäre Messergebnis sinnvolle Ergebnisse. Bei den eigenen Berechnungen haben wir uns ebenfalls für dieses Vorgehen entschieden. PA2 gibt bei Szenarien mit 0 Impulsen im Untergrund niedrigere Werte für die EKG aus, was als Abweichung festzustellen ist. Bei den eigenen Berechnungen sind wir davon ausgegangen, dass man durch die oben ausgeführten Ersetzungen auf die gleichen Ergebnisse kommen müsste, wie wenn 1 Impuls im Spektrum gewesen wäre.

Auffällig war außerdem, wie die Programme mit der Berechnung von BS, $u(\text{BS})$, UG und OG umgehen, sofern die Entscheidungsregel für das Vorliegen des physikalischen Effekts nicht positiv ist ($A < A^*$). In der Norm sind die Berechnungen von UG und OG jeweils an die Bedingung geknüpft, dass das primäre Messergebnis größer der Erkennungsgrenze ($A > A^*$) ist. Also gibt es für diese Größen keine mit der Norm konforme Berechnungsgrundlage. Wenn man den besten Schätzer als finales Messergebnis nach Anwendung der Norm versteht, dann sollte dieser Zahlenwert nicht angegeben werden.

Wie bereits erwähnt, ist nur PA1 in der Lage, Alphaspektren sinnvoll zu fitten. Problematisch wird dann aber der Umgang mit der Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen. Dabei ist unklar, wie gut die Fitparameter den Low-Tail des Alphaspektrums darstellen – insbesondere dann, wenn das ganze Spektrum nur wenige hundert Impulse aufweist.

Bei den Untersuchungen zu Messungen mit kontaminiertem Tracer ist aufgefallen, dass die Softwarepakete hier unterschiedliche Ergebnisse für EKG und NWG liefern. Das liegt daran, dass beide Softwarepakete auf unterschiedlichen Modellen der Auswertung beruhen. Während bei PA1 ein Blindwert als Aktivität mit einer Unsicherheit eingegeben wird, nutzt PA2 ein Spektrum des Blindwertes und zieht dann eine Zählrate von der Bruttozählrate ab. Vorteil des Vorgehens von PA1 ist, dass Blindwerte über einen längeren Zeitraum gemittelt werden können und man über die Standardabweichung einen realistischeren Wert für die Unsicherheit des Blindwerts erhalten kann, als wenn man nur ein Blindwertspektrum heranzieht und annimmt, dass die Unsicherheiten ausschließlich auf der Zählstatistik beruhen würden. Demgegenüber hat das Vorgehen von PA2 den Vorteil, dass man nur ein weiteres Spektrum einlesen muss, ohne dies komplett auswerten zu müssen.

Die richtige Umsetzung der Abklingkorrektur wurde an einem Beispiel für Ra-224 gezeigt. Einschränkend muss man erwähnen, dass PA1 die Unsicherheiten der Halbwertszeiten nicht berücksichtigt. Dies ist der Tatsache geschuldet, dass kaum ein sinnvolles Szenario existiert, bei dem die Unsicherheit der Abklingkorrektur eine wesentliche Rolle spielt.

Abschließend kann festgestellt werden, dass man in den untersuchten Szenarien mit beiden Softwarepaketen sinnvolle Ergebnisse erhält und die Programme für einen Einsatz in der Routine geeignet erscheinen.

4.4 LSC

4.4.1 Vorbemerkung und Modell der Auswertung

Die zu untersuchenden Softwarepakete wurden in Kapitel 2.4 identifiziert. Die untersuchten Programme sind MikroWin 300 SL (Version 5.60) sowie das Excel Makro zur QuantaSmart Software (Version 1.16). Es wurden die Versionen verwendet, welche aktuell in den Messstellen Verwendung finden. Der Vergleich erfolgt mit der Software UncertRadio (Version 2.4.23) sowie mit einer eigenen Berechnung.

Die beiden kommerziellen Softwareprodukte sind sehr eng an die Hardware der Hersteller gebunden. Spektren, die mit dem einen Messsystem aufgenommen wurden, können nicht konvertiert und dann mit der jeweils anderen Software ausgewertet werden. Es wurde daher für jede Software eine separate Auswertung durchgeführt, die jeweils individuell mit UncertRadio und der eigenen Berechnung verglichen wurde.

Das Excel Makro zur QuantaSmart Software für die Reporterstellung nach DIN EN ISO 11929 von Perkin Elmer ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt nur zur Auswertung von Proben geeignet, die lediglich ein Nuklid enthalten (Single Label DPM Assays). Zudem muss in jedem Fall eine Quenchkurve zur Auswertung hinterlegt sein. Aus diesem Grund können mit dieser Software nur zwei der betrachteten Szenarien (Szenario A1 und A2) berechnet werden, die jedoch den Großteil der praktischen Anwendung abdecken.

MikroWin erlaubt in der vorliegenden Version unter Anwendung der DIN EN ISO 11929 ebenfalls nur die Auswertung einfach markierter Proben, so dass auch hier einige der angedachten Szenarien nicht betrachtet werden können. Die überwiegende Zahl der praktischen Anwendungsfälle ist jedoch abgedeckt.

Die Softwareprodukte wurden an den Instituten und unter den Einsatzbedingungen untersucht, in denen Sie praktische Verwendung finden. Für die zu untersuchenden Szenarien bedeutete dies, dass eine entsprechende Anpassung an die analytische Praxis erfolgen musste.

Die beiden Softwareprodukte werden in der Folge als PB1 und PB2 bezeichnet und getrennt betrachtet.

4.4.2 Software PB2

4.4.2.1 Modell der Auswertung

Für die Auswertung wurde die im Handbuch der Software verwendeten Formeln herangezogen. Diese wurden vom Hersteller speziell für die Anwendung in der Flüssigszintillationsspektrometrie angepasst, um die Berechnung möglichst einfach zu gestalten.

Folgende Formelzeichen finden Verwendung:

- c_A Aktivitätskonzentration in Bq/L,
 R_g Bruttozählrate in 1/s,
 R_0 Nulleffektzählrate in 1/s,
 R_n Nettozählrate in 1/s mit $R_n = R_g - R_0$,
 $\varepsilon(Q)$ quenchgradabhängige Zählausbeute,
 V Probenvolumen in L,
 $u(V)$ Unsicherheit des Probenvolumens in L,
 F weiterer Faktor, zum Beispiel Ausbeute nach Probenvorbereitung (hier $F = 1$),
 $u(F)$ Unsicherheit des weiteren Faktors (hier $u(F) = 0$),
 $u_{rel}(c_A)$ relative Gesamtmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration,
 $u_{rel}(R_n)$ relative zählstatistische Messunsicherheit der Nettozählrate,
 $u_{rel}(ref\ std)$ relative Unsicherheit des Referenzstandards,
 $u_{rel}(dil)$ relative Unsicherheit der Verdünnung des Referenzstandards zur Herstellung einer Quenchreihe,
 n Zahl der Verdünnungsschritte,
 $u_{rel}(qc)$ relative Unsicherheit der Quenchkurvenermittlung,
 $u_{rel}(tSIE)$ relative Unsicherheit der Quenchgradbestimmung einer Messprobe,
 t_g, t_0 Messdauer für Probe und Nulleffekt in min,
 $u_{rel}(\varepsilon(Q))$ relative Unsicherheit der quenchgradabhängigen Zählausbeute.

Die Aktivitätskonzentration c_A berechnet sich gemäß

$$c_A = \frac{R_n}{\varepsilon(Q) \cdot V \cdot F} \quad (24)$$

Die Unsicherheit der Aktivitätskonzentration wird erhalten nach

$$u(c_A) = \frac{1}{\varepsilon(Q) \cdot V \cdot F} \sqrt{(R_g - R_0)^2 \cdot \left(\left(\frac{u_{rel}(\varepsilon(Q))}{\varepsilon(Q)} \right)^2 + \left(\frac{u(V)}{V} \right)^2 + \left(\frac{u(F)}{F} \right)^2 + \left(\frac{R_g}{t_g} + \frac{R_0}{t_0} \right) \right)} \quad (25)$$

Die Unsicherheit der Zählausbeute ergibt sich gemäß

$$u_{rel}(\varepsilon(Q)) = \sqrt{u_{rel}^2(ref\ std) + n \cdot u_{rel}^2(dil) + u_{rel}^2(qc) + u_{rel}^2(tSIE)} \quad (26)$$

Die Formeln für die Berechnung der Unsicherheit der Nettozählrate, von Erkennungs- und Nachweisgrenze, des besten Schätzers und seiner Unsicherheit sowie der oberen und unteren Grenze des Überdeckungsintervalls stimmen mit den entsprechenden Formeln in der DIN EN ISO 11929 [19] überein.

4.4.2.2 Szenario B1 und B2: ein Nuklid (H-3), feste Roi, Messgeräteuntergrund, Messeffizienz aus Quenchkurve/TDCR, keine/geringe oder erhöhte Aktivität

- Szenario B1: ein Nuklid in der Probe, feste ROI, Abzug des Messgeräteuntergrunds, Messeffizienz aus Quenchkurve bzw. TDCR (hier Bestimmung von H-3 in Urin nach Destillation) keine (bzw. geringe) Aktivität
- B2: wie zuvor, jedoch (erhöhte) Aktivität vorhanden

Die ermittelten Messwerte sind in Tabelle 31 dargestellt. Die Auswertung für Szenario B1 ist in Tabelle 32, die für Szenario B2 in Tabelle 33 zusammengestellt.

Tabelle 31: Eingangsdaten und aufgenommene Messwerte für das LSC-Szenario B1 und B2 für PB2.

Szenario	B1	B2
Volumen (L)	0,01	0,01
$u(V)$ (L)	0,0001	0,0001
R_g (CPM)	1,81	19,34,
t_m (min)	300	300
R_0 (cpm)	1,62	1,62
t_0 (min)	300	300
Efficiency e	0,1577	0,1578
$u_{rel}(QC)$	2,0%	2,0%
$u_{rel}(tSIE)$	2,0%	2,0%
$u_{rel}(dil)$	1,0%	1,0%
Anzahl dil.	10	10
$u_{rel}(Ref)$	2,0%	2,0%
$k(1-\alpha)$	3,000	3,000
$k(1-\beta)$	1,645	1,645

Tabelle 32: Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B1 für H-3 für PB2, verglichen mit UncertRadio (UR) und einer eigenen Berechnung (EB)

B1 H-3	a	u(a)	BS	u(BS)	EKG	NWG	UG	OG
PB2					3,295	5,274		
UR					3,295	5,274		
EB					3,295	5,274		

Tabelle 33: Ermittelte Werte in Bq/l für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B2 für H-3 für PB2, verglichen mit UncertRadio (UR) und einer eigenen Berechnung (EB)

B2 H-3	a	u(a)	BS	u(BS)	EKG	NWG	UG	OG
PB2	187,16	11,14	187,16	11,14	3,293	5,297	165,32	208,90
UR	187,16	11,14	187,16	11,14	3,293	5,297	165,32	208,90
EB	187,16	11,14	187,16	11,14	3,293	5,297	165,32	208,90

Die Ergebnisse der Berechnung der charakteristischen Grenzen stimmen für alle geprüften Auswertarten überein.

4.4.3 Software PB1

4.4.3.1 Modell der Auswertung

Bei der Auswertung von LSC-Spektren wird meist mit Zählraten in CPM gerechnet. Dies wird auch hier so gehandhabt. Folgendes Auswertemodell wird verwendet um die Aktivitätskonzentration c_A zu berechnen:

$$c_A = \frac{R_b - R_0}{60 \cdot \varepsilon \cdot V} \cdot f_1 \quad (27)$$

Dabei sind:

- c_A Aktivitätskonzentration in Bq/L
- R_b Bruttozählrate in cpm
- R_0 Untergrundzählrate in cpm
- ε Zählausbeute in 1
- V Volumen in L
- f_1 Korrektionsfaktor für das Abklingen

Die Zählausbeute wird über den TDCR, der prinzipiell das Verhältnis der dreifachen und doppelten Koinzidenzen darstellt, berechnet. Im Idealfall (hohe Zählraten) sind Zählausbeute und TDCR gleich. Bei verschiedenen Messaufgaben ist eine Quenchkurve hinterlegt, mit der dann eine zusätzliche Korrektion des TDCR erfolgen kann. Das ist besonders dann sinnvoll, wenn wenig Impulse vorliegen, für Low-Level-Messaufgaben oder wenn ein starker Quench, z. B. Farbquench vorliegt.

Das weitere Aufstellen der Formeln erfolgt wie bei 4.3.1 dargelegt, wobei der erweiterte Kalibrierfaktor ω sich wie folgt zusammensetzt:

$$\omega = \frac{f_1}{60 \cdot \varepsilon \cdot V} \quad (28)$$

4.4.3.2 Vorbemerkung zur Auswahl der Szenarien

Bei der ursprünglichen Planung der Szenarien war nicht sicher, inwieweit manche Szenarien umsetzbar sind. Problematisch sind bei PB1 die Umsetzung von Verfahren mit zwei oder mehr Analyten, wie beispielsweise Sr-89 und Sr-90 mit aufwachsendem Y-90. Das liegt daran, dass nicht genügend Matrizen (Anmerkung: Das Programm führt die Berechnungen in Matrizen aus, deren Anzahl begrenzt ist.) vorgesehen sind, um die komplizierten Berechnungen durchzuführen. Außerdem benutzt die Messstelle, die uns bei der Durchführung des Projektes unterstützt hat, kein Verfahren zur Gesamt-Alpha-Bestimmung in der Routine. Der Umfang des Projektes würde aber deutlich gesprengt werden, wenn noch Methoden zu etablieren und gegebenenfalls Chemikalien zu beschaffen wären.

Daher wurde die Überprüfung an den etablierten Methoden der Messstelle vorgenommen. Zusätzlich wurde noch die Čerenkovmessung am Beispiel des Sr-90/Y-90 untersucht.

4.4.3.3 Szenarien B1-B6 ein Nuklid (H-3), feste Roi, Messgeräteuntergrund, Messeffizienz aus Quenchkurve/TDCR, geringe oder erhöhte Aktivität, variable zusätzliche Unsicherheiten

Für die ersten Szenarien wurden zwei Tritiumproben (eine mit wenig (low) bzw. viel (high) Messeffekt) und eine Probe zur Bestimmung des Messuntergrundes angesetzt. Dazu wurde synthetischer Urin mit Standard und Szintillationscocktail gemischt.

Im Messprotokoll werden folgende Angaben aufgelistet: Messdauer, Gesamtpulse, Bruttozählrate, TDCR corr, Zählausbeute, Probenvolumen, 1-sigma Zählunsicherheit, 1-sigma Gesamtunsicherheit, die Aktivitätskonzentration und deren absolute Unsicherheit sowie die übrigen Parameter, die in der DIN EN ISO 11929 vorgesehen sind.

Tabelle 34: Eingangswerte und aufgenommene Messwerte für die LSC-Szenarien B1 bis B6 für das Programm PB1.

Szenario	B1	B2	B3low	B3high	B4low	B5low	B6low	B6high
Volumen (L)	0,001							
$u_{rel}(V)$ (%)	3,0%	3,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%
R_b (cpm)	23,2	776,4	23,2	776,4	23,2	23,2	23,2	776,4
t_m (min)	60							
R_0 (cpm)	15,5	15,5	15,5	15,5	15,5	15,5	15,5	15,5
t_0 (min)	60							
TDCR	0,521	0,420	0,521	0,420	0,521	0,521	0,521	0,420
Zählausbeute	0,468	0,379	0,468	0,379	0,468	0,468	0,413	0,419
u_{rel} (TDCR)	2,6%	0,6%	2,6%	0,6%	2,6%	2,6%	2,6%	0,6%
u_{rel} (sonstige)	2,0%	2,0%	0,0%	0,0%	15,0%	40,0%	5,0%	5,0%
u_{rel} (pip)	0,6%	0,6%	0,0%	0,0%	0,6%	0,6%	0,6%	0,6%
Bezugsdatum	01.01.21							
Messdatum	11.12.23							
$k(1-\alpha)$	3,000							
$k(1-\beta)$	1,645							

Zuerst wurde festgestellt, dass die angegebene Messdauer die Messdauer ohne Totzeitkorrektur darstellt (real time). Die angegebene Bruttozählrate bezieht sich auf die totzeitkorrigierte Messdauer (live time). Für das Nachrechnen wurden die Bruttozählraten verwendet.

Bei den Auswertungen lieferte die eigene Berechnung und die Rechnung mittels UncertRadio jeweils identische Zahlenwerte. Da die den Szenarien zugrundeliegenden Modelle der Auswertung jeweils vergleichsweise einfach waren, war dies nicht weiter überraschend. In der Folge werden daher die Ergebnisse zur besseren Übersicht in den Tabellen gemeinsam dargestellt.

Tabelle 35: Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B1 für H-3 für PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR)

	B01-low	B01-low	rel.	B02-high	B02-high	rel.
	EB/UR	PB1	Abw.	EB/UR	PB1	Abw.
PM	323,6	324,9	0,4%	39480	39480	0,0%
u(PM)	36,8	38,3	4,1%	1470	1748	18,9%
urel	11,4%	11,8%		3,7%	4,4%	
BS	323,6	324,9	0,4%	39480	39484	0,0%
u(BS)	36,8			1470		
EKG	90,7	76,8	-15,3%	110	95	-13,9%
NWG	144,1	125,0	-13,3%	180	151	-16,1%
UG	251,6	249,8	-0,7%	36600	36058	-1,5%
OG	395,6	399,9	1,1%	42370	42910	1,3%

Bei diesen Szenarien wurde die Zählzelle mit Hilfe einer Quenchkurve aus dem TDCR berechnet. Die Berechnung der Aktivitätskonzentration durch die eigene Berechnung wurde die im Messprotokoll angegebene Zählzelle verwendet. Die Aktivitätskonzentrationen sind jeweils übereinstimmend. Auch bei der unteren und oberen Grenze des Überdeckungsintervalls liegen keine signifikanten Unterschiede vor. Die Unsicherheiten werden durch die Software etwas höher ausgegeben. Die Ursache könnte daran liegen, dass für die Umrechnung des TDCR in die Zählzelle keine Berechnungsvorschrift der Unsicherheit vorlag. Fraglich erscheinen die Unterschiede bei Erkennungs- und Nachweisgrenze. Möglicherweise wurde in dem Parameterfile die Erkennungs- und Nachweisgrenze zum Zeitpunkt der Messung ausgegeben.

Tabelle 36: Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B3 – B5 für die low-Probe H-3 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR)

	B3low	B3low	B3low	B4low	B4low	B4low	B5low	B5low	B5low
	EB/UR	PB1	Abw.	EB/UR	PB1	Abw.	EB/ER	PB1	Abw.
PM	323,6	324,9	0,4%	323,6	324,9	0,4%	323,6	324,9	0,4%
u(PM)	34,8	35,7	2,6%	59,7	54,6	-8,6%	134,0	115,8	-13,6%
urel	10,7%	11,0%		18,5%	16,8%		41,4%	35,6%	
BS	323,6	324,9	0,4%	323,6	324,9	0,4%	326,5	325,8	-0,2%
u(BS)	34,8			59,7			130,4		
EKG	90,6	76,7	-15,3%	90,6	76,7	-15,3%	90,6	76,7	-15,3%
NWG	143,3	123,8	-13,6%	156,2	135,0	-13,6%	288,9	240,8	-16,6%
UG	255,4	255,0	-0,2%	206,5	217,9	5,5%	76,6	98,0	27,9%
OG	391,7	394,8	0,8%	440,6	431,9	-2,0%	586,7	551,8	-5,9%

Bei den Szenarien B3low bis B5low werden für die Probe aus B1 die zusätzlichen Unsicherheiten von 0 % über 15 % auf 40 % variiert. Zwar sind diese zusätzlichen Unsicherheiten

unrealistisch, können aber aufzeigen, ob neben der Zählstatistik weitere Unsicherheiten berücksichtigt werden und ob die Nachweisgrenze – aber nicht die Erkennungsgrenze – steigt. Die Messunsicherheiten $u(\text{PM})$ nehmen mit wachsender zusätzlicher Unsicherheit zu. Allerdings beträgt die relative Unsicherheit bei B5low 35,6 %, obwohl eine zusätzliche Unsicherheit von 40 % angesetzt wurde. Die relative Abweichung der unteren Grenze des Überdeckungsintervalls nimmt ebenfalls stark zu. Um noch besser einschätzen zu können, was hier im Argen liegt, werden die Untersuchungen ebenfalls auf die high-Proben ausgedehnt, da bei diesen Proben der Beitrag der Zählstatistik zur Gesamtunsicherheit vernachlässigt werden kann.

Tabelle 37: Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B3 – B5 für die high-Probe H-3 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR)

	B3high EB/UR	B3high PB1	B3high Abw.	B4high EB/UR	B4high PB1	B4high Abw.	B5high EB/UR	B5high -PB1	B5high Abw.
PM	39483	39484	0,0%	39483	39484	0,0%	39483	39484	0,0%
u(PM)	286	465	62,4%	5934	5045	-15,0%	15798	13395	-15,2%
urel	0,7%	1,2%		15,0%	12,8%		40,0%	33,9%	
BS	39483	39484	0,0%	39483	39484	0,0%	39762	39553	-0,5%
u(BS)	286			5934			15442		
EKG	112	95	-15,4%	112	95	-15,4%	112	95	-15,4%
NWG	177	150	-15,3%	192	163	-15,3%	355	290	-18,5%
UG	38922	38573	-0,9%	27852	29596	6,3%	10015	13230	32,1%
OG	40044	40395	0,9%	51113	49372	-3,4%	70488	65738	-6,7%

Bei B3high kann festgestellt werden, dass ein Unsicherheitsbetrag in den eigenen Berechnungen noch nicht implementiert ist, da sowohl die zählstatistische Unsicherheit als auch die Unsicherheit des TDCR bei hohen Zählraten gegen 0 gehen. Im Gegensatz dazu wird bei B4high und B5high festgestellt, dass die Unsicherheiten niedriger ausfallen als die angesetzte zusätzliche Messunsicherheit. Diese Auffälligkeiten werden damit erklärt, dass offenbar nur das Messergebnis in dem Parameterfile abklingkorrigiert wird. Die Messunsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze würden sich dann auf das Datum der Messung beziehen.

Im letzten Szenario, das sich mit dem Nuklid Tritium beschäftigt, wird statt der Bestimmung der Zählhausbeute über den quenchkorrigierten TDCR nur der TDCR herangezogen.

Bezüglich der Erkennungs- und Nachweisgrenzen können die vorher getroffenen Aussagen wiederholt werden. Bei den Unsicherheiten tritt wiederum die Abweichung auf, dass die selbst berechnete relative Standardunsicherheit größer als die von PB1 angegebene Unsicherheit ist. Das kann wieder damit erklärt werden, dass nur das Messergebnis abklingkorrigiert wurde.

Tabelle 38: Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B6 für die low- und high-Proben H-3 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR)

	B6low EB/ UR	B6low PB1	P6low Abw.	B6high EB/ UR	B6high PB1	P6high Abw
PM	366,7	368,1	0,4%	35713	35715	0,0%
u(PM)	43,5	43,4	-0,3%	1817	1581	-13,0%
urel	11,9%	11,8%		5,1%	4,4%	
BS	366,7	368,1	0,4%	35713	35715	0,0%
u(BS)	43,5			1817		
EKG	102,7	86,9	-15,4%	101	86	-15,4%
NWG	164,0	141,6	-13,6%	161	137	-15,3%
UG	281,4	283,1	0,6%	32152	32616	1,4%
OG	451,9	453,1	0,3%	39275	38815	-1,2%

4.4.3.4 Szenario B7 und B8 ein Nuklid (C-14), feste Roi, Messgeräteuntergrund, Messeffizienz aus Quenchkurve bzw. TDCR, geringe oder erhöhte Aktivität

Tabelle 39: Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B7 und B8 für die low- und high-Proben C-14 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR)

	B7low EB/ UR	B7low PB1	B7high EB/ UR	B7high PB1	P7high Abw
PM	175,6	175,1	7633	7639	0,1%
u(PM)	11,6	12,3	386	386	0,0%
urel	6,6%	7,0%	5,1%	5,1%	-0,1%
BS	175,6	175,1	7633	7639	0,1%
u(BS)	11,6		386		
EKG	13,9	14,0	12,0	12,0	0,2%
NWG	22,4	22,5	19,3	19,3	0,3%
UG	152,9	151,0	6877	6882	0,1%
OG	198,3	199,3	8390	8397	0,1%
	B8low EB/ UR	B8low PB1	B8high EB/UR	B8high PB1	P8high Abw.
PM	175,6	176,4	6844	6835	-0,1%
u(PM)	11,6	12,4	346	346	0,0%
urel	6,6%	7,0%	5,1%	5,1%	
BS	175,6	176,0	6844	6835	-0,1%
u(BS)	11,6		346		
EKG	13,9	14,1	10,7	10,8	0,1%
NWG	22,4	22,7	17,3	17,3	0,0%
UG	152,9	152,1	6165	6158	-0,1%
OG	198,3	200,8	7522	7513	-0,1%

Bei den Szenarien B7 und B8 werden die Untersuchungen mit dem Nuklid C-14 durchgeführt. Beim Szenario B7 wird die Zählzählbeute mit Hilfe einer Quenchkurve bestimmt und bei B8 wird der TDCR herangezogen.

Bei allen Angaben mit Ausnahme der Unsicherheit bei B7low wird eine sehr gute Übereinstimmung mit relativen Abweichungen < 1,5 % erreicht. Ob hier bei der Unsicherheitenbetrachtung in den eigenen Berechnungen ein Unsicherheitsbeitrag einer Eingangsgröße nicht verwendet wurde, kann nicht ausgeschlossen werden. Trotzdem können keine Hinweise festgestellt werden, dass PB1 von der DIN EN ISO 11929 abweichen würde.

4.4.3.5 Szenario B9 Čerenkovmessung (Sr-90/B-90), feste Roi, Messgeräteuntergrund, Messeffizienz aus TDCR, geringe oder erhöhte Aktivität

Bei dem Szenario B9 geht es um die Bestimmung von Sr-90/Y-90 durch Čerenkovmessung. Bei der Čerenkovmessung wird der TDCR über eine im Handbuch angegebene Formel umgerechnet.

Tabelle 40: Eingangsdaten und aufgenommene Messwerte für das LSC-Szenario B9 für das Programm PB1.

Szenario	B9low	B9high
Volumen (L)	0,020	
$u_{rel}(V)$ (%)	0,0%	0,0%
R_b (cpm)	24,5	243,2
t_m (min)	60	
R_0 (cpm)	12,2	12,2
t_0 (min)	60	
TDCR	0,610	0,705
Zählzählbeute	0,48972	0,55349
$u_{rel}(TDCR)$	2,1%	0,6%
$u_{rel}(\text{sonstige})$	5,0%	5,0%
$u_{rel}(\text{pip})$	0,6%	0,6%
Bezugsdatum	01.06.22	
Messdatum	13.12.23	
$k(1-\alpha)$	1,645	
$k(1-\beta)$	1,645	

Das Parameterfile von PB1 gibt Aktivitätskonzentration, EG und NWG bezogen auf das Bezugsdatum aus. Außerdem Aktivitätskonzentration, $u(c)$, UG, OG und BS unkorrigiert. Der aus den Ausgaben berechnete Korrektionsfaktor beträgt 1,0374 und stimmt mit den eigenen Berechnungen (1,0374) genau überein.

Tabelle 41: Ermittelte Werte in Bq/L für den besten Schätzer (BS), dessen Unsicherheit, die Erkennungs- und Nachweisgrenze sowie die Grenzen des Überdeckungsintervalls beim LSC-Szenario B9 für die low- und high-Proben Sr-90 mit PB1 verglichen mit einer eigenen Berechnung (EB) und UncertRadio (UR)

	B9low EB/ UR	B9low PB1	B9low Abw.	B9high EB/ UR	B9high PB1	B9high Abw
PM	21,7	21,7	-0,1%	360,8	360,8	0,0%
u(PM)	1,82	2,25	23,7%	18,6	21,2	14,1%
urel	8,4%	10,4%		5,1%	5,9%	
BS	21,7	21,7	-0,1%	360,8	360,8	0,0%
u(BS)	1,8			18,6		
EKG	1,85	1,78	-3,7%	1,64	1,58	-3,6%
NWG	3,81	3,71	-2,7%	3,37	3,26	-3,4%
UG	18,1	17,3	-4,7%	324,4	319,3	-1,6%
OG	25,3	26,1	3,2%	397,2	402,3	1,3%

Zuerst ist festzustellen, dass die berechneten Werte für die Aktivitätskonzentration (PM und BS) sehr genau übereinstimmen. Bei den Unsicherheiten kann wieder festgestellt werden, dass PB1 hier offenbar mehr Einflüsse berücksichtigt. Nicht zu erklären ist allerdings der kleine, aber doch deutliche Unterschied bei der Erkennungsgrenze. Anhand der folgenden Formel für die Erkennungsgrenze kann festgestellt werden, dass alle benötigten Eingangswerte hinreichend genau bekannt sind, um eine wesentlich bessere Übereinstimmung zu ermöglichen:

$$c^{\#} = k_{1-\alpha} \cdot \omega \cdot \sqrt{R_0 \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0} \right)} = k_{1-\alpha} \cdot \frac{f_1}{60 \cdot \varepsilon \cdot V} \cdot \sqrt{R_0 \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0} \right)} \quad (29)$$

Die Zählausbeute ε wurde mit fünf signifikanten Stellen ausgegeben, der Korrektionsfaktor kann beliebig genau berechnet werden, die Untergrundzählrate mit drei signifikanten Stellen und die Messdauer mit der Genauigkeit der Totzeit, die etwa 20 s beträgt. Daher wird angenommen, dass die Erkennungsgrenze auf den Zeitpunkt der Messung und nicht auf das Bezugsdatum bezogen ausgegeben wird, obwohl dies aus dem Ausdruck anders hervorgeht. Das mag bei diesem Beispiel keine große Rolle spielen, man muss aber auch andere Szenarien in Betracht ziehen, bei denen kurzlebige Nuklide wie P-32 oder Sr-89 bestimmt werden sollen, wie dies beispielsweise beim Ringversuch „BfS-RV-2022-P-32“ zur Bestimmung von P-32 in Urin durchgeführt durch die Leitstelle für Inkorporationsüberwachung der Fall war.

4.4.4 Zusammenfassung LSC

Schon nach der Bearbeitung der Arbeitspakete 1 und 2 war festzustellen, dass bei den meisten Software- und Hardwareherstellern der Berechnung der charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 durch die Software des Herstellers keine große Rolle eingeräumt wurde.

Lediglich ein Hersteller bietet die Berechnung der Ergebnisse durch die mitgelieferte Software an (PB1). Ein weiterer Hersteller liefert ein optionales Excel-Makro (PB2), das hier ebenfalls untersucht wurde.

Durch die direkte Implementierung der Berechnung in die Herstellersoftware bei PB1 ist gewährleistet, dass man die Berechnungen und Ausgaben an die Anforderung der Messaufgabe anpassen kann. Durch die mitgelieferten Parameterfiles hat man dafür einen guten Ausgangspunkt. Außerdem gibt es sehr viele Möglichkeiten, zusätzliche Unsicherheiten zu implementieren. Bei dem Nuklid C-14 konnte festgestellt werden, dass die Berechnungen sehr zuverlässig ausgeführt werden. Bei den Nukliden H-3 und Sr-90/Y-90 hingegen stellt sich ein Problem mit dem Umgang mit der Abklingkorrektur heraus. PB1 führt die Abklingkorrektur nur bei der Berechnung des primären Messergebnisses aus. Dadurch ergibt sich das Problem, dass man die Ausgaben der Software schlecht in einen Prüfbericht übertragen kann, da es einem Kunden nur schwer zuzumuten ist, wenn sich die Ergebnisse auf unterschiedliche Bezugsdaten beziehen. Wir empfehlen den Nutzern der Software dieses Problem zu lösen, indem die Abklingkorrektur ausschließlich auf den erweiterten Kalibrierfaktor angewendet wird.

Nach Bearbeitung des Projektes konnten wir die in den Rechenmatrizen der Software hinterlegten Formeln und die Definitionen analysieren. Dabei hat sich zum Einen bestätigt, dass die Abklingkorrektur nur auf das Messergebnis angewendet wird, und zum Anderen, dass die im Handbuch angegebene Formel zur Berechnung der relativen Unsicherheit des TDCR von der Formel in der Definitionsdatei abweicht.

PB2 lässt sich nach der Installation direkt aus dem Messprogramm starten. Dabei haben wir den Eindruck gewonnen, dass ausschließlich Verfahren umgesetzt werden können, die eine Quenchkurve für die Bestimmung eines einzelnen Nuklids einsetzen. Eine Ausbeutekorrektur scheint sich auch nur auf eine Messserie anwenden zu lassen. Muss man beispielsweise sechs bis zehn Sr-90 oder P-32-Proben messen, bei denen wahrscheinlich jede eine andere Ausbeute aufweist, wird es schwierig dies hier umzusetzen. Ebenfalls ist eine Zerfallskorrektur nicht implementiert. Wir haben daher mit der Software nur zwei Szenarien für die Bestimmung von Tritium nach Destillation umgesetzt. Auf weitere Szenarien wie die Bestimmung von C-14 musste verzichtet werden, da die Messstelle das Programm nicht in der Routine verwendet. Für die untersuchten Szenarien kann festgestellt werden, dass die Berechnung der charakteristischen Grenzen mit den eigenen Berechnungen übereinstimmen.

4.5 Gammaspektrometrie

4.5.1 Modell der Auswertung

Für die Auswertung in der Gammaspektrometrie wurde zur Übersichtlichkeit und zur besseren Vergleichbarkeit mit den zu überprüfenden Programmen ein einziges Modell der Auswertung erstellt, mit dem die Ergebnisse für alle zu betrachtenden Szenarien berechnet werden können.

Das allgemeine Modell für zählende Messungen ionisierender Strahlung wird beschrieben in DIN EN ISO 11929-1:2021, Kapitel 6.2.2, Gleichungen (20) und (21) und hat die Form:

$$Y = (X_1 - X_2 \cdot X_3 - X_4) \cdot W \tag{30}$$

mit der Messgröße Y , der Bruttozählrate X_1 , der Nulleffektrate X_2 , ggf. mit einem Abschirmfaktor X_3 und einer zusätzlichen Untergrundkorrektur X_4 . W ist der Kalibrierfaktor. Im Folgenden wird kein Abschirmfaktor betrachtet, d.h. $X_3 = 1$ für alle betrachteten Szenarien. In der Gam-

maspektrometrie ist der Beitrag X_4 von Bedeutung, der den Untergrund unter einem Peak im Spektrum – das Kontinuum – beschreibt. Ein Modell der Auswertung, explizit zur Auswertung von Einzellinien in der Gammaskpektrometrie unter Berücksichtigung eines linearen Kontinuums, wird beschrieben in DIN EN ISO 11929-3:2021 Anhang B.2 (informativ), Gleichungen (B.2)-(B.4). In den hier betrachteten Szenarien wird außerdem eine Korrektur des Zerfalls des betrachteten Nuklids zwischen Bezugszeitpunkt und Messung berücksichtigt - was in der Inkorporationsüberwachung typischerweise keine Rolle spielt, da die Aktivität zum Messzeitpunkt maßgeblich ist - sowie durch den Anwender definierte zusätzliche Messunsicherheiten. Damit ergibt sich ein Modell analog zu DIN EN ISO 11929-3:2021 Anhang B.2, Gl. (B.13), das im Folgenden näher erläutert wird.

Die Auswertung basiert auf der Trapezmethode unter Annahme eines linearen Kontinuums unter der Gammalinie. Dabei werden im Bereich der Gammalinie drei benachbarte Bereiche definiert: Bereich B, der die Linie enthält, sowie die Bereiche A1 und A2 zu niedrigeren bzw. höheren Energien hin. Die Breite b des Bereichs B wird auf 2,5 Halbwertsbreiten der betrachteten Linie festgelegt, es sei denn der Peaksuchalgorithmus der Programme ergibt andere Bereichsgrenzen, dann werden diese zur Berechnung herangezogen. Ist kein Peak vorhanden, empfiehlt die DIN EN ISO 11929 ebenfalls eine Breite von 2,5 Halbwertsbreiten anzuwenden. Wird eine geringere Breite verwendet, muss eine Korrektur vorgenommen werden, da nicht mehr der gesamte Signalbereich überdeckt wird und sich somit effektiv die Nachweiswahrscheinlichkeit reduziert. Diese Korrektur wird nicht von allen Auswerteprogrammen automatisch durchgeführt! Die Bereiche A1 und A2 haben eine definierte Breite $L/2$ von einer Halbwertsbreite. Das Kontinuum wird in den hier durchgeführten Berechnungen im Bereich der Linie als linear angenommen. Zur praktischen Auswertung werden die Bereichsbreiten von Energien in ganzzahlige Kanalzahlen umgerechnet. Da die Auswerteprogramme eine geringe Variation der Energiekalibration/der Energielage der Linie tolerieren, kann es zu Verschiebungen der Kanalzahlen bzw. der Kanalbreiten kommen, daher wurde eine Abweichung von einem Kanal gegenüber den selbst errechneten Werten toleriert.

Die Aktivitätskonzentration c der Einzellinie berechnet sich aus dem Kalibrierfaktor ω und der Nettozählrate R_{net} wie folgt:

$$c = \omega \cdot R_{net} \cdot e^{\ln(2) \frac{\Delta T}{T_H}} \cdot F \quad (31)$$

wobei T_H die Halbwertszeit des betrachteten Nuklids und ΔT die Dauer zwischen Bezugszeitpunkt und Messung darstellen. Der Faktor F wird genutzt, um eine zusätzliche Messunsicherheit berücksichtigen zu können. Er hat den konstanten Wert 1 und eine Unsicherheit entsprechend der zusätzlichen Typ-A/B-Unsicherheit des jeweiligen Szenarios. Der Kalibrierfaktor ω berücksichtigt die Nachweiseffizienz ε des Detektors, die Emissionswahrscheinlichkeit p der Gammalinie sowie die Bezugsmasse m :

$$\omega = \frac{1}{\varepsilon \cdot p \cdot m} \quad (32)$$

Die Nettozählrate berechnet sich aus der Gesamt- bzw. Bruttoreate R_g , dem Kontinuumsbeitrag R_0 und der Nulleffektrate R_b bzw. den zugehörigen Zählereignissen n_i , mit $i = g, 0, b$, nach:

$$R_{\text{net}} = R_g - R_0 - R_b = \frac{n_g}{t_g} - \frac{n_0}{t_g} - \frac{n_b}{t_b}, \quad (33)$$

mit der Dauer der Messung t_g , bzw. der Dauer der Nulleffektmessung t_b . Die Bruttoereignisse n_g entsprechen dem Gesamtinhalt aller Kanäle des o.g. Bereichs B. n_0 berechnet sich aus den Gesamtinhalten n_1 und n_2 der Bereiche A1 und A2, sowie dem Verhältnis c_0 der Kanalanzahlen der Bereiche B zu A1 und A2:

$$c_0 = \frac{b}{L/2 + L/2} = \frac{b}{L}, \quad (34)$$

$$n_0 = c_0 \cdot (n_1 + n_2). \quad (35)$$

Für die Unsicherheiten der Messgrößen n_g , n_1 und n_2 gilt $u^2(n_i) = n_i$ ($i=g,1,2$). Die Größe n_b mit zugehöriger Unsicherheit ergibt sich als Nettowert einer separaten Auswertung des Nulleffektspektrums analog zu Gl. (33) ohne Nulleffekt n_b .

Die Unsicherheitsfunktion $u(c)$ ergibt sich aus Gl. (31) durch Unsicherheitsfortpflanzung

$$u^2(c) = \left(\frac{\partial c}{\partial \omega}\right)^2 u^2(\omega) + \left(\frac{\partial c}{\partial n_g}\right)^2 u^2(n_g) + \dots \quad (36)$$

und geeigneten, angepassten Vereinfachungen, wie z. B. $\left(\frac{\partial c}{\partial \omega}\right) = \frac{c}{\omega}$:

$$u^2(c) = \left(\frac{c}{\omega}\right)^2 u^2(\omega) + \omega \cdot e^{\ln(2)\frac{\Delta T}{T_H}} \cdot F \cdot \left(\frac{n_g}{t_g^2} + \frac{c_0 \cdot (n_1 + n_2)}{t_g^2} + \frac{u^2(n_b)}{t_b^2}\right) + c^2 \left(\ln(2)\frac{\Delta T}{T_H^2}\right)^2 u^2(T_H) + \left(\frac{c}{F}\right) u^2(F). \quad (37)$$

Aus dem primären Messergebnis (Gl. ((31)) und dessen Unsicherheit (Gl. (37)) lassen sich alle anderen charakteristischen Größen nach den allgemeinen Formeln wie in Kap. 4.3.1 angegeben berechnen.

Für Szenarien, in denen Entfaltungen von Multipletts notwendig sind, wird, soweit möglich, die Qualität bzw. Plausibilität der Entfaltung geprüft, im Anschluss aber mit den von den Programmen ermittelten Impulszahlen weitergerechnet. Ggf. notwendige Anpassungen der Parameterwerte des Auswertemodells werden für die jeweiligen Szenarien angegeben.

Für die Auswertung von Nukliden mit mehreren Gammalinien werden zunächst alle Linien einzeln nach obenstehendem Modell ausgewertet. Der Aktivitätsmittelwert wird dann wie in DIN EN ISO 11929-3 Anhang B.5 empfohlen durch die Methode der kleinsten Quadrate unter Berücksichtigung angenommener Kovarianzen zwischen den Einzelaktivitäten bestimmt. Die Methode der kleinsten Quadrate wird allgemeiner beschrieben in DIN EN ISO 11929-3 Kapitel 5.6.

Alle Spektren, die zur Auswertung der Szenarien selektiert wurden, wurden auf dem gleichen hochreinen Germaniumdetektor in gleicher Messgeometrie aufgenommen. Daher gelten für alle Spektren die gleiche Energie-, Halbwertsbreiten- und Effizienzkalibration. Da weiterhin

nur eine begrenzte Anzahl an bekannten Nukliden untersucht wird, können in den Auswerteprogrammen die Energie und Effizienzpaare explizit, tabellarisch eingegeben werden, um eine bessere Vergleichbarkeit zu ermöglichen. Um sicherzustellen, dass die exakten Effizienzen zur Berechnung verwendet werden, wird in den Auswertungen eine punktweise interpolierte Effizienzfunktion verwendet. Die Unsicherheit wird für alle Effizienzwerte pauschal mit 5 % festgelegt. Für die Energie- und Halbwertsbreitenkalibration verwenden die untersuchten Programme polynomielle Interpolationsfunktionen über den gesamten Energiebereich, sodass hier kleine Unterschiede zwischen den Programmen und eigenen Berechnungen auftreten können.

Das oben beschriebene Auswertemodell (Gl. (31)) berechnet eine massenbezogene Aktivitätskonzentration. Da in der Inkorporationsüberwachung auch Angaben in absoluten Aktivitäten verwendet werden, wurden zweckdienlich alle Massen auf den Wert 1 kg gesetzt, sodass die Zahlenwerte der Aktivität und der Aktivitätskonzentration identisch sind. Für die folgenden Szenarien wird sich daher immer auf absolute Aktivitäten bezogen.

4.5.2 Vorbetrachtungen

Die zu untersuchenden Softwarepakete wurden in Kapitel 2.4 identifiziert. Für die hier durchgeführte Evaluierung wurde jeweils die zu Beginn der Projektbearbeitung aktuellste Version dieser Programme verwendet. Softwareupdates, die während des Bearbeitungszeitraumes veröffentlicht worden sind, wurden nur im Nachhinein berücksichtigt, sofern diese relevante Änderungen beinhalten. Die verwendeten Programme sind UncertRadio V.2.4.23, GammaVision V.8.10.02 (Ametek/Ortec) und Genie-2000 V.3.4.1 (Mirion/Canberra).

Von den Anwendern wird teilweise nicht Genie-2000, sondern APEX-Gamma bzw. APEX-InVivo bzw. im Falle der Alphaspektrometrie APEX-Alpha eingesetzt. Dabei handelt es sich jeweils um besondere Benutzer-Interfaces, die auf die spezielle Anwendung zugeschnitten sind. Sie nutzen in jedem Fall als Auswerte-Algorithmus die Genie-2000-Algorithmen. APEX-InVivo unterscheidet sich von APEX-Gamma lediglich in der Darstellung der Spektren und dadurch, dass mit dem Programm eine Personendatenbank verknüpft ist, die es erlaubt, Inkorporationsdosen zu berechnen. An dieser Stelle soll nur APEX-Gamma betrachtet werden. Um zu zeigen, dass keinerlei Unterschiede zwischen Genie und APEX-Gamma auftreten, wurden zwei Spektren (Spektrum_1 und Spektrum_2) zunächst unter Genie-2000, Vers. 3.4.1 und danach unter APEX-Gamma ausgewertet. Die Ergebnisse sind in den nachfolgenden Tabellen dargestellt.

Tabelle 42: Spektrum_1, Auswertung Genie-2000

Nuklid	EKG [Bq]	NWG [Bq]	Aktivität [Bq]	Uns. Akt [%]	UG [Bq]	OG [Bq]	BS [Bq]	Uns. BS [%]
Co-60	4,06E+00	9,04E+00	2,06E+02	4,50E+00	1,87E+02	2,24E+02	2,06E+02	4,54E+00
Cs-137	1,66E-01	3,56E-01	9,03E+00	5,90E+00	7,98E+00	1,01E+01	9,03E+00	5,91E+00

Tabelle 43: Spektrum_1, Auswertung APEX-Gamma

Nuklid	EKG [Bq]	NWG [Bq]	Aktivität [Bq]	Uns. Akt [%]	UG [Bq]	OG [Bq]	BS [Bq]	Uns. BS [%]
Co-60	4,06E+00	9,04E+00	2,06E+02	4,50E+00	1,87E+02	2,24E+02	2,06E+02	4,54E+00
Cs-137	1,66E-01	3,56E-01	9,03E+00	5,90E+00	7,98E+00	1,01E+01	9,03E+00	5,91E+00

Tabelle 44: Spektrum_2, Auswertung Genie-2000

Nuklid	EKG [Bq]	NWG [Bq]	Aktivität [Bq]	Uns. Akt [%]	UG [Bq]	OG [Bq]	BS [Bq]	Uns. BS [%]
Co-60	1,08E+00	2,20E+00	1,53E+03	3,54E+00	1,43E+03	1,64E+03	1,53E+03	3,54E+00
Eu-152	4,27E+00	8,72E+00	1,16E+04	5,90E+00	1,10E+04	1,21E+04	1,16E+04	5,91E+00
Eu-154	2,91E+00	5,87E+00	6,41E+02	3,70E+00	5,94E+02	6,87E+02	6,41E+02	3,70E+00

Tabelle 45: Spektrum_2, Auswertung APEX-Gamma

Nuklid	EKG [Bq]	NWG [Bq]	Aktivität [Bq]	Uns. Akt [%]	UG [Bq]	OG [Bq]	BS [Bq]	Uns. BS [%]
Co-60	1,08E+00	2,20E+00	1,53E+03	3,54E+00	1,43E+03	1,64E+03	1,53E+03	3,54E+00
Eu-152	4,27E+00	8,72E+00	1,16E+04	5,90E+00	1,10E+04	1,21E+04	1,16E+04	5,91E+00
Eu-154	2,91E+00	5,87E+00	6,41E+02	3,70E+00	5,94E+02	6,87E+02	6,41E+02	3,70E+00

Wie die Daten zeigen, gibt es bei den berechneten Ergebnissen keinen Unterschied zwischen Genie-2000 und APEX-Gamma.

Um das in Kapitel 4.5.1 beschriebene Auswertemodell in den Auswerteprogrammen abbilden zu können, müssen einige Parameter der Gleichungen (31) bis (35) festgelegt werden. Die dafür notwendigen Einstellungen in Genie-2000 (G2000) und GammaVision (GV) werden im Folgenden beschrieben (in UncertRadio muss das Modell direkt in Form von Formeln und Zahlenwerten eingegeben werden, sodass keine zusätzlichen Voreinstellungen notwendig sind).

Peak- und Kontinuumsflächenbestimmung: Die Flächen zur Kontinuumsbestimmung wurden oben mit je einer Halbwertsbreite rechts und links der Peakfläche festgelegt. In G2000 wurde daher unter „Kalibrierung->Einstellungen“ im Block „Kontinuum“ ein lineares Kontinuum mit einer Halbwertsbreite eingestellt. Die gleiche Einstellung sollte auch bei der Analyse im Punkt „Peak-Fläche->Summe/Nicht-Lin. LSQ Fit“ gewählt werden. In GV findet sich eine äquivalente Option unter „Analyse->Einstellungen->Probentyp...“, im Reiter „Probenparameter“, im Block „Kanäle für Untergrundbestimmung“. Die Peakbereichsbreite, für den Fall, dass kein Peak vorhanden ist, wird in G2000 festgelegt unter „Analyse->Nachweisgrenzen->ISO 11929 NWG“. Die Option „Benutze variable ROI-Breiten“ muss aktiviert werden (andernfalls werden programminterne Vorgaben verwendet), danach kann die gewünschte Breite als Vielfaches der Halbwertsbreite angegeben werden. In GV muss diese Vorgabe in einer Initialisierungsdatei „b30winds.ini“ angegeben werden, diese befindet sich im Installationspfad von GV. In Zeile 55 ist der Parameter „Dominant Background Peak Width Factor“ auf den gewünschten Wert zu

setzen. Dem Zahlenwert folgt, mit Leerzeichen getrennt, ein programminterner Parameter, für den „T“ eingetragen sein muss, um den eingetragenen Wert zu verwenden.

Probenmasse/-volumen: Die Bezugsmenge und -einheit kann in G2000 nach Öffnen des Spektrums in der „Probeninformation“ in den entsprechenden Feldern eingegeben werden, in GV unter „Analyse->Einstellungen->Probentyp...“, im Reiter „System“, im Block „Einheiten“. Beide Programme haben auch ein Feld zur Eingabe der Unsicherheit der Bezugsmenge vorgesehen. Diese Unsicherheit wird jeweils quadratisch zur Unsicherheit des Endergebnisses addiert.

Abklingzeit zwischen Bezugsdatum und Messung: In G2000 kann der Bezugszeitpunkt als „Probendatum“ in der „Probeninformation“ angegeben werden. Es ist zu beachten, dass falls hier ein Datum hinterlegt ist, stets eine Rückrechnung der Probenaktivität auf dieses Datum erfolgt. Soll keine Rückrechnung durchgeführt werden, muss dieses Feld frei bleiben. In GV ist das Bezugsdatum unter „Analyse->Einstellungen->Probentyp...“, im Reiter „Zerfallskorrektur“ anzugeben. Über die Checkbox „Probennahme“ kann die Korrektur ein- oder ausgeschaltet werden.

Zusätzliche Messunsicherheiten: In G2000 können zusätzliche Messunsicherheiten ebenfalls in der „Probeninformation“ angegeben werden. Hier ist das Feld „Zufälliger Fehler (%)“ zu verwenden. Die hier angegebene Unsicherheit wird quadratisch zu allen anderen Unsicherheiten addiert. Die im Feld „Systematischer Fehler (%)“ angegebene Unsicherheit würde linear zu den sonstigen Unsicherheiten addiert, was in der aktuell gültigen Version der DN EN ISO 11929 nicht vorgesehen ist – daher sollte dieses Feld nicht genutzt werden. GV bietet mehrere Möglichkeiten, zusätzliche Unsicherheiten anzugeben: Unter „Analyse->Einstellungen->Probentyp...“, im Reiter „Analyse“, im Block „Zusätzl. Fehler“ kann ein „systematisch[er]“ Fehler, welcher als gleichverteilt betrachtet wird, oder ein „zufällig[er]“ Fehler, welcher als normalverteilt behandelt wird, angegeben werden. Weiterhin können im Reiter „Unsicherheiten“ bis zu neun zusätzliche Unsicherheiten mit variabler Beschreibung angegeben werden. Diese werden normalverteilt behandelt und quadratisch addiert.

Wahrscheinlichkeiten α , β , γ : Die Wahrscheinlichkeiten α und β werden in G2000 unter „Analyse->Nachweisgrenzen->ISO 11929 NWG“ als „Vertrauensfaktor“ eingegeben und haben beide den gleichen Wert. γ wird als „Bayesscher Vertrauensfaktor“ separat angegeben. In GV sind die drei Werte ebenfalls in der „b30winds.ini“ Datei, Zeilen 46-48 anzugeben.

Nulleffekt/Untergrund: In beiden Programmen kann ein Nulleffekt bzw. Untergrund vom gemessenen Spektrum abgezogen werden, wobei sich der Abzug nur auf die im Untergrundspektrum bestimmten Netto-Peakflächen bezieht. In G2000 muss dazu zunächst das entsprechende Spektrum bzgl. Peaksuche und Peakflächenbestimmung ausgewertet werden – typischer Weise mit den gleichen Auswerteparametern wie die tatsächliche Auswertung. Anschließend kann das Untergrundspektrum in dem Schritt „Analyse->Flächenkorrektur->1 Std.Ug. Abzug...“ als Untergrund Datei ausgewählt werden. (Dateipfad und -name dürfen in Summe nicht zu lang sein, da die Datei sonst nicht als Untergrunddatei geöffnet werden kann – in dem Fall erscheint bei der Auswertung die Fehlermeldung Nr. 8092H). In GV muss das Untergrundspektrum ebenfalls zunächst ausgewertet werden. Danach kann mittels „Analyse->Einstellungen->Untergrundkorrektur (PBC)->PBC erstellen“ eine „PBC“-Datei (Peak Background Correction) erstellt werden, in der die Nulleffektzählraten mit Ihren Unsicherheiten hinterlegt sind. Die PBC-Datei kann dann unter „Analyse->Einstellungen->Probentyp...“ im Reiter „Korrekturen“ explizit angegeben werden. Alternativ kann die PBC-Datei zunächst geladen werden

(„Analyse->Einstellungen->Untergrundkorrektur (PBC)->PBC laden“ – oder im Rahmen eines Makros (JOB File)). In diesem Fall muss bei „Korrekturen“ anstelle einer Datei die Option „Internal“ gewählt werden.

Im Folgenden werden die beiden kommerziellen Programme in zufälliger Zuordnung als „Programm Gamma 1“ (PG1) und „Programm Gamma 2“ (PG2) geführt und mit UncertRadio (UR) und eigenen Berechnungen (EB) verglichen. Falls notwendig werden PG1 und PG2 separat mit UR und EB verglichen. Als Referenz zum Vergleich der Ergebnisse werden immer die EB genutzt. Für alle Szenarien liegt eine sehr gute Übereinstimmung von EB und UR vor.

4.5.3 Szenario 1: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt

Aufgrund fehlender Aktivität können nur Erkennungs- (EKG) und Nachweisgrenzen (NWG) verglichen werden. Da in typischen praktischen Anwendungen der Gammaskpektrometrie immer zumindest das Kontinuum gemessen wird, treten Sonderfälle von null Zählereignissen ($n_g = 0$) – wie sie in der Alphaspektrometrie vorkommen – in der Gammaskpektrometrie nicht auf.

Für PG1 wurde folgendes alternatives Vorgehen im Vergleich zu o.g. Modell festgestellt: Hat der Peaksuchalgorithmus einen Peak identifiziert, so werden alle charakteristischen Werte entsprechend des Modells berechnet. Wird hingegen kein Peak identifiziert, so wird das Kontinuum im Peakbereich B nicht aus den angrenzenden Bereichen A1 und A2 berechnet, sondern Bereich B wird als Kontinuum definiert, d.h. es wird $n_0 = n_g$ gesetzt anstatt n_0 nach Gl. (34) und (35) zu berechnen. (In DIN EN ISO 11929:2021 ist die Methode zur Bestimmung des Kontinuums nicht strikt festgelegt. Bei DIN EN ISO 11929-3 Anhang B, der für obiges Modell als Grundlage verwendet wurde, handelt es sich lediglich um einen informativen Anhang.) Dieses Verfahren liefert für Bereiche B, in denen kein oder nur ein sehr kleiner, nicht erkannter Peak vorhanden ist, stets eine EKG, die größer ist als eine evtl. falsch negativ beurteilte, aber vorhandene Aktivität. Jedoch werden EKG und NWG dadurch unterschiedlich berechnet, je nachdem ob ein Peak identifiziert wurde oder nicht, und werden somit abhängig von den Einstellungen der Peaksuche. Der Vorteil dieser Methode liegt darin, dass Störeinflüsse, wie z. B. Flanken benachbarter Peaks, implizit in die Berechnung der Grenzen mit einfließen und nicht explizit berücksichtigt werden müssen. Ist tatsächlich keine Aktivität im Spektrum nachweisbar, resultiert diese Methode der Berechnung in anderen Werten für EKG und NWG als das o.g. Modell der Auswertung, die jedoch, solange der Beitrag der Probe unterhalb der nach obigem Modell berechneten EKG liegt, nicht systematisch höher oder niedriger liegen, sondern statistischen Schwankungen folgen.

Unter Berücksichtigung dieser Vorgehensweise lassen sich die EKG und NWG von PG1 reproduzieren (Kennzeichnung „wie PG1“ in Tabelle 46), können aber deutlich vom o.g. Auswertemodell abweichen. PG2 folgt dem Auswertemodell und weicht bei EKG und NWG um 3,4 % bzw. 3,7 % zu niedrigeren Werten ab, wobei gemäß den Anforderungen eine Abweichung von bis zu 5 % akzeptabel ist. Die leichte Abweichung könnte auf unterschiedliche Kanalbereiche für B, A1 und A2 zurückzuführen sein, was schwer zu überprüfen ist, da PG2 die exakte Kanal-

lage der Peak- und Kontinuumsbereiche nur angibt, wenn ein Peak gefunden wurde.

Tabelle 46: Szenario Gamma 1: Die EKG und NWG wurden für Cs-137 berechnet, in einem Spektrum ohne Aktivität und ohne Nulleffekt. PG1 (oben) und PG2 (unten) verwenden für den Fall eines nicht vorhandenen Peaks unterschiedliche Berechnungsgrundlagen, die in diesem Fall zu deutlich unterschiedlichen Grenzen führen. Daher werden die Programme separat verglichen, als Referenz dienen jeweils die an die Berechnungsart angepassten EB.

Cs-137 - PG1	EKG (Bq)	NWG (Bq)
EB wie PG1	0,06083	0,1357
UR wie PG1	0,06083	0,1357
PG1	0,06080	0,1360
Abweichung in %	EKG	NWG
EB wie PG1	0,00	0,00
UR wie PG1	0,00	-0,02
PG1	-0,05	0,20
Cs-137 - PG2	EKG (Bq)	NWG (Bq)
EB nach Modell d. Auswertung	0,08361	0,18159
UR nach Modell d. Auswertung	0,08360	0,18160
PG2	0,08078	0,17485
Abweichung in %	EKG	NWG
EB nach Modell d. Auswertung	0,00	0,00
UR nach Modell d. Auswertung	-0,01	0,01
PG2	-3,38	-3,71

4.5.4 Szenario 2: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit

In Erweiterung des Szenarios 1 werden zusätzlich eine Zerfallskorrektur und zusätzliche Typ-A/B-Unsicherheiten von 25 % betrachtet. Eine explizite Unterscheidung zwischen Unsicherheiten vom Typ A und Typ B (gem. [3]) ist in der aktuell gültigen Version der DIN EN ISO 11929:2021 nicht vorgesehen, sodass diese gleichbehandelt werden. Die EKG und NWG werden jeweils verglichen für den Fall der reinen Zerfallskorrektur und den Fall der Zerfallskorrektur mit zusätzlichen Messunsicherheiten (MU). Analog zu Szenario 1 werden für PG1 und PG2 getrennte Betrachtungen durchgeführt, da EKG und NWG unterschiedlich berechnet werden. Unter Berücksichtigung der Berechnungsmethoden stimmt PG1 mit EB und UR sehr genau überein während sich für PG2 wieder leichte Unterschiede innerhalb des zulässigen 5 %-Bereichs ergeben (s. Tabelle 47).

Es ist anzumerken, dass PG2 keine Unsicherheit der Halbwertszeit berücksichtigt, wodurch die Unsicherheitsbetrachtung sachlich unvollständig ist. In praktischen Anwendungen spielt die Unsicherheit der Halbwertszeit aber meist eine untergeordnete Rolle, sodass der Einfluss

auf die EKG und NWG bzw. ggf. die Messunsicherheit gering ist.

Die zusätzlichen Unsicherheiten werden in beiden Programmen korrekt abgebildet.

Tabelle 47: Szenario Gamma 2: Berechnung der Cs-137 EKG und NWG für PG1 (oben) und PG2 (unten) unter Berücksichtigung einer Zerfallskorrektur und zusätzlicher Messunsicherheiten (MU). Das Bezugsdatum liegt ca. eine Halbwertszeit (30,018 a) vor dem Messdatum. Als Referenz werden die EB verwendet.

Cs-137 – PG1	EKG (Bq)	NWG (Bq)	EKG (Bq) + 25% zus MU	NWG (Bq) + 25% zus. MU
EB wie PG1	0,1216	0,2714	0,1216	0,3267
UR wie PG1	0,1216	0,2714	0,1216	0,3270
PG1	0,1215	0,2711	0,1215	0,3267
Abweichung in %	EKG	NWG	EKG + 25% zus MU	NWG + 25% zus. MU
EB wie PG1	0,00	0,00	0,00	0,00
UR wie PG1	0,00	0,00	0,00	0,09
PG1	-0,08	-0,11	-0,08	0,00
Cs-137 - PG2	EKG (Bq)	NWG (Bq)	EKG (Bq) + 25% zus MU	NWG (Bq) + 25% zus. MU
EB nach Modell d. Auswertung	0,1672	0,3631	0,1672	0,4372
UR nach Modell d. Auswertung	0,1671	0,3630	0,1671	0,4375
PG2	0,1613	0,3492	0,1613	0,4206
Abweichung in %	EKG	NWG	EKG + 25% zus MU	NWG + 25% zus. MU
EB nach Modell d. Auswertung	0,00	0,00	0,00	0,00
UR nach Modell d. Auswertung	-0,06	-0,03	-0,06	0,07
PG2	-3,53	-3,82	-3,53	-3,80

4.5.5 Szenario 3: Mehrlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt

Viele Gamma-aktive Nuklide emittieren mehr als eine gut messbare Gammalinie. Um den Umgang der Programme mit diesen zu überprüfen, wird zunächst der Fall Co-60 ohne vorhandene Aktivität betrachtet. Beim Erstellen der Nuklidbibliotheken fällt auf, dass PG1 die Unsicherheit der Emissionswahrscheinlichkeit jeder Linie berücksichtigt, PG2 hingegen nur eine Nuklidunsicherheit, die dann für alle Emissionswahrscheinlichkeiten verwendet wird. Hierbei handelt es sich nicht strikt um eine Abweichung von der DIN EN ISO 11929, sondern eher um eine Ungenauigkeit. Es liegt jedoch am Nutzer zu beachten, dass an dieser Stelle die größte relative Unsicherheit der betrachteten Linien zu verwenden ist, um eine Unterbewertung der Messunsicherheiten zu vermeiden.

Für die Bestimmung der EKG und NWG von Mehrlinienstrahlern wird in DIN EN ISO 11929-3, Anhang B.5 (informativ) „Gammaspectrometrie – Bestimmung der Aktivität aus mehreren Linien eines Radionuklids“ sowohl eine Methode zur Mittelung der Messwerte und Unsicherheiten beschrieben als auch die Berechnung der „Standardunsicherheit als Funktion eines

angenommenen wahren Werts der Messgröße“ (B.5.5). Damit können formal EKG und NWG für die gemittelte Aktivität eines Nuklids berechnet werden. PG1 verwendet für die nuklidbezogene EKG und NWG jedoch immer die Werte der Linie mit den niedrigsten Grenzen. PG2 verwendet die erste als Schlüssellinie („Key line“) markierte Linie aus der Bibliothek, falls keine Linie mit Aktivität bestimmt wurde, oder einen mit den Emissionswahrscheinlichkeiten der Linien gewichteten Mittelwert, falls mehrere Linien identifiziert wurden. Das Verwenden der Linie mit den geringsten EKG und NWG erscheint nachvollziehbar, da diese auch der am besten messbaren Linie entspricht. Im Falle niedriger Aktivität kann u.U. nur diese Linie zur Aktivitätsberechnung verwendet werden, somit sind die EKG und NWG dieser Linie die relevanten Größen bzgl. der Messbarkeit des Nuklids. Unter diesem Gesichtspunkt und unter Berücksichtigung, dass es sich bei diesen Berechnungen innerhalb der ISO 11909:2021-3 um einen informativen Anhang handelt und in der DIN EN ISO 11929 anderweitig keine Aussagen zum Fall von Mehrlinienstrahlern gemacht werden, wird dies nicht als Abweichung betrachtet.

PG1 und PG2 stimmen mit den EB- und UR-Ergebnissen überein, aber unterscheiden sich untereinander aufgrund unterschiedlicher Berechnungsmethoden.

Tabelle 48: Szenario Gamma 3: Die EKG und NWG wurden für den Mehrlinienstrahler Co-60 berechnet. Exemplarisch wurden hier sowohl die einzelnen Linien als auch die angegebenen Grenzen des Nuklids betrachtet. Während PG1 (links) die kleinsten Linien-EKG und NWG für das gesamte Nuklid verwendet, gibt PG2 (rechts) die Grenzen der in der Bibliothek zuerst gelisteten (Schlüssel-) Linie an.

Co-60 – PG1	EKG (Bq)	NWG (Bq)	Co-60 – PG2	EKG (Bq)	NWG (Bq)
EB wie PG1 - 1173 keV	0,0724	0,1647	EB - 1173 keV	0,0819	0,1838
EB wie PG1 - 1332 keV	0,0773	0,1764	EB - 1332 keV	0,0597	0,1410
UR wie PG1 - 1173 keV	0,0724	0,1647	UR - 1173 keV	0,0819	0,1838
UR wie PG1 - 1332 keV	0,0773	0,1764	UR - 1332 keV	0,0597	0,1410
PG1 1173 keV	0,0724	0,1647	PG2 - 1173 keV	0,0818	n.a.
PG1 1332 keV	0,0773	0,1764	PG2 - 1332 keV	0,0598	n.a.
PG1 - Nuklid gesamt	0,0724	0,1650	PG2 - Nuklid gesamt	0,0818	0,1825
Abweichung in %	EKG	NWG	Abweichung in %	EKG	NWG
EB wie PG1 - 1173 keV	0,00	0,00	EB - 1173 keV	0,00	0,00
EB wie PG1 - 1332 keV	0,00	0,00	EB - 1332 keV	0,00	0,00
UR wie PG1 - 1173 keV	-0,01	0,00	UR - 1173 keV	0,00	0,00
UR wie PG1 - 1332 keV	-0,01	0,00	UR - 1332 keV	-0,01	0,01
PG1 1173 keV	0,00	0,01	PG2 - 1173 keV	-0,13	-
PG1 1332 keV	0,00	0,00	PG2 - 1332 keV	0,21	-
PG1 - Nuklid gesamt	0,01	0,18	PG2 - Nuklid gesamt	-0,13	-0,69

n.a. – nicht angegeben (die Werte wurden der Analyse des gesamten Nuklids entnommen, PG2 gibt dabei nicht alle Werte der Einzellinien an.)

4.5.6 Szenario 4: Mehrlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur

In Erweiterung des Szenarios 3 werden zusätzlich eine Zerfallskorrektur und zusätzliche Typ A/B Unsicherheiten von 25 % betrachtet.

PG1 bezieht die EKG und NWG des Nuklids auf die kleinsten Grenzen der Einzellinien, PG2 auf die in der Bibliothek erstgenannte (Schlüssel)-Linie. PG2 berücksichtigt keine Unsicherheit der Halbwertszeit. Alle Werte stimmen gut (Abweichungen <2 %) mit EB und UR überein.

Tabelle 49: Szenario Gamma 4: Co-60 EKG und NWG ohne Aktivität, unter Berücksichtigung einer Zerfallskorrektur und zusätzlicher Messunsicherheiten von 25 %. Das Bezugsdatum liegt ca. 8 a (Halbwertszeit = 5,271 a) vor dem Messdatum.

Co-60 – PG1	EKG (Bq)	NWG (Bq)	Co-60 – PG2	EKG (Bq)	NWG (Bq)
EB wie PG1 - 1173 keV	0,2075	0,5687	EB - 1173 keV	0,2347	0,6342
EB wie PG1 - 1332 keV	0,2215	0,6090	EB - 1332 keV	0,1711	0,4861
UR wie PG1 - 1173 keV	0,2074	0,5689	UR - 1173 keV	0,2347	0,6349
UR wie PG1 - 1332 keV	0,2215	0,6092	UR - 1332 keV	0,1711	0,4869
PG1 – Nuklid gesamt	0,2060	0,5650	PG2 – Nuklid gesamt	0,2329	0,6262
Abweichung in %	EKG	NWG	Abweichung in %	EKG	NWG
EB wie PG1 - 1173 keV	0,00	0,00	EB - 1173 keV	0,00	0,00
EB wie PG1 - 1332 keV	0,00	0,00	EB - 1332 keV	0,00	0,00
UR wie PG1 - 1173 keV	-0,02	0,04	UR - 1173 keV	0,01	0,11
UR wie PG1 - 1332 keV	0,00	0,03	UR - 1332 keV	-0,01	0,17
PG1 - Nuklid gesamt	-0,70	-0,64	PG2 – Nuklid gesamt	-0,76	-1,27

4.5.7 Szenario 5: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, mit Nulleffekt

In diesem Szenario ist im Spektrum ein identifizierbarer Peak vorhanden, der aber ausschließlich aus dem Nulleffekt resultiert. Für PG1 und PG2 wurden sowohl die Mess- als auch die Nulleffektspektren separat analysiert. Die EB- und UR-Auswertungen wurden ebenfalls für jedes Programm separat ausgeführt. Für PG2 wurden große Abweichungen für EKG und NWG zwischen EB/UR und PG2 festgestellt (ca. 8 %). Um Rechenfehler in EB und UR bzw. Bedienfehler von PG2 auszuschließen, wurde die gleiche Auswertung auch ohne Nulleffektabzug durchgeführt. Dabei ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen EB/UR und PG2. Zur weiteren Kontrolle wurden für PG1 ebenfalls Auswertungen mit und ohne Nulleffektabzug durchgeführt.

Tabelle 50: Szenario Gamma 5: Vergleich von Auswertungen mit und ohne Nulleffektabzug. Ohne Abzug stimmen sowohl PG1 als auch PG2 gut mit EB/UR überein. Wird ein Abzug durchgeführt, liegt für PG1 weiterhin gute Übereinstimmung vor, PG2 weicht jedoch deutlich (ca. 8 %) ab.

Cs-137 - PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)
EB ohne Nulleffekt	4,52	5,92	0,08306	0,1780
PG1 ohne Nulleffekt	4,51	5,93	0,08580	0,1840
EB mit Nulleffekt	-	-	0,3494	0,7142
UR mit Nulleffekt	-	-	0,3493	0,7142
PG1 mit Nulleffekt	-	-	0,3500	0,7160
Abweichung in %	A	u(A)	EKG	NWG
EB ohne Nulleffekt	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 ohne Nulleffekt	-0,14	0,14	3,30	3,39

EB mit Nulleffekt	-	-	0,00	0,00
UR mit Nulleffekt	-	-	-0,02	-0,01
PG1 mit Nulleffekt	-	-	0,18	0,25
Cs-137 - PG2	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)
EB ohne Nulleffekt	4,595	5,89	0,07831	0,1684
PG2 ohne Nulleffekt	4,595	5,89	0,07841	0,1686
EB mit Nulleffekt	-	-	0,3704	0,7566
UR mit Nulleffekt	-	-	0,3704	0,7565
PG2 mit Nulleffekt	-	-	0,4005	0,8173
Abweichung in %	A	u(A)	EKG	NWG
EB ohne Nulleffekt	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2 ohne Nulleffekt	0,00	0,00	0,13	0,12
EB mit Nulleffekt	-	-	0,00	0,00
UR mit Nulleffekt	-	-	0,00	-0,01
PG2 mit Nulleffekt	-	-	8,13	8,03

Hier stimmen die Ergebnisse in beiden Fällen gut überein, siehe Tabelle 50. (Die höheren Abweichungen ohne Nulleffekt sind vermutlich auf unterschiedliche Lagen der Bereiche A1 und A2 zurückzuführen. Wird der Nulleffektabzug durchgeführt, stellt dieser den dominanten Beitrag zu EKG und NWG dar, sodass die Unterschiede zu EB/UR geringer ausfallen.)

Alle Vergleichsrechnungen außer PG2 mit Nulleffektabzug liefern eine gute Übereinstimmung. Es konnte keine Erklärung für diese Abweichung gefunden werden, sodass ein Rechenfehler in PG2 vorzuliegen scheint.

(Szenario 6 wird aus inhaltlichen Gründen später, in Kapitel 4.5.16, betrachtet.)

4.5.8 Szenario 7: Mehrlinienstrahler, Aktivität in einer Linie detektierbar, ohne Nulleffekt

In dem gewählten Spektrum wurde für den Mehrlinienstrahler Co-60 nur die erste Linie bei 1173 keV nachgewiesen. Für PG1 und PG2 liegt jeweils, unter Berücksichtigung der jeweiligen Kanallagen, eine gute Übereinstimmung mit EB/UR für diese Linie vor. Beide Programme geben als charakteristische Größen des Nuklids korrekt die Werte der identifizierten Linie an.

Tabelle 51: Szenario Gamma 7: Für den Mehrlinienstrahler Co-60 konnte nur eine Linie, bei 1173 keV, identifiziert werden. Für PG1 und PG2 liegt eine gute Übereinstimmung mit EB und UR vor. Beide Programme übernehmen korrekt die Werte der 1173-keV-Linie für das Nuklid.

Co-60 - PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - 1173 keV	0,1978	31,73	0,0820	0,1838	0,1980	31,56	0,0756	0,3208
EB - 1332 keV	-	-	0,1145	0,2511	-	-	-	-
UR - 1173 keV	0,1978	31,73	0,0820	0,1838	0,1980	31,56	0,0756	0,3208
UR - 1332 keV	-	-	0,1145	0,2511	-	-	-	-

PG1 - 1173 keV	0,1978	-	0,0820	0,1838	-	-	-	-
PG1 - 1332 keV	-	-	0,1132	0,2484	-	-	-	-
PG1 - Nuklid	0,1980	31,73	0,0820	0,1840	0,1980	31,56	0,0756	0,3210
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - 1173 keV	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - 1332 keV	-	-	0,00	0,00	-	-	-	-
UR - 1173 keV	0,00	0,00	-0,01	0,01	-0,03	0,00	0,00	0,00
UR - 1332 keV	-	-	-0,03	0,00	-	-	-	-
PG1 - 1173 keV	0,00	-	0,00	0,01	-	-	-	-
PG1 - 1332 keV	-	-	-1,17	-1,07	-	-	-	-
PG1 - Nuklid	0,11	0,00	0,00	0,12	0,00	-0,01	-0,03	0,06

Co-60 - PG2	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - 1173 keV	0,3418	24,08	0,1059	0,2318	0,3418	24,08	0,1805	0,5032
UR - 1173 keV	0,3418	24,08	0,1059	0,2318	0,3418	24,08	0,1805	0,5032
PG2 - 1173 keV	0,3418	-	0,1060	-	-	-	-	-
PG2 - 1332 keV	-	-	0,0900	-	-	-	-	-
PG2 - Nuklid	0,3418	24,08	0,1060	0,2322	0,3418	24,08	0,1803	0,5034
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - 1173 keV	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - 1173 keV	0,00	0,00	0,03	-0,02	0,01	0,00	0,00	-0,01
PG2 - 1173 keV	-0,01	-	0,12	-	-	-	-	-
PG2 - Nuklid	0,00	0,00	0,12	0,15	0,01	0,01	-0,13	0,04

4.5.9 Szenario 8: Einlinienstrahler, mit Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur

Es wird eine Zerfallskorrektur durchgeführt. Die mit PG1 und PG2 errechneten Größen unterscheiden sich leicht untereinander, was auf leicht unterschiedliche Peakbereichsgrenzen zurückzuführen ist. EB und UR wurden unter Berücksichtigung der jeweiligen Bereichsgrenzen ausgewertet. PG2 berücksichtigt keine Unsicherheit der Halbwertszeit. Die Ergebnisse von PG1 stimmen besser als 4 % mit EB und UR überein, die Ergebnisse von PG2 sogar besser als 1 %.

Tabelle 52: Gamma Szenario 8: Cs-137 charakteristische Größen im Vergleich von PG1 (obere Hälfte) und PG2 (untere Hälfte) mit EB und UR. Das Bezugsdatum liegt ca. eine Halbwertszeit (30,018 a) vor dem Messdatum.

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	9,030	5,922	0,166	0,356	9,030	5,922	7,982	10,08
UR	9,030	5,922	0,166	0,356	9,030	5,922	7,982	10,08
PG1	9,020	5,930	0,172	0,367	9,020	5,930	7,970	10,10
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG

EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00	-0,01
PG1	-0,12	0,13	3,57	3,15	-0,12	0,13	-0,15	0,20

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	9,188	5,894	0,157	0,337	9,188	5,894	8,126	10,25
UR	9,188	5,894	0,157	0,337	9,188	5,894	8,126	10,25
PG2	9,188	5,894	0,157	0,337	9,188	5,894	8,125	10,25
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2	0,01	-0,01	0,15	0,15	0,01	-0,01	-0,01	0,02

4.5.10 Szenario 9: Einlinienstrahler, mit Aktivität, ohne Nulleffekt

Es wird keine Zerfallskorrektur durchgeführt. Die charakteristischen Größen werden verglichen für die Fälle 0 % und 25 % zusätzliche Typ-A/B-Unsicherheiten. Wie in Szenario 8 wurden EB und UR unter Berücksichtigung der jeweiligen Bereichsgrenzen ausgewertet. Die Ergebnisse von PG1 stimmen besser als 4 % mit EB und UR überein, die Ergebnisse von PG2 sogar besser als 1 %.

Tabelle 53: Gamma Szenario 9-1: Charakteristische Größen für Cs-137 ohne zusätzliche Messunsicherheit im Vergleich zu EB und UR: oben: PG1; unten: PG2.

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	4,516	5,922	0,083	0,178	4,517	5,922	3,992	5,041
UR	4,517	5,922	0,083	0,178	4,517	5,922	3,992	5,041
PG1	4,510	5,930	0,086	0,184	4,510	5,930	3,990	5,040
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,01	0,00	-0,01	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1	-0,13	0,14	3,30	3,39	-0,14	0,14	-0,06	-0,02

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	4,595	5,894	0,078	0,168	4,595	5,894	4,064	5,126
UR	4,595	5,894	0,078	0,168	4,595	5,894	4,064	5,126
PG2	4,595	5,894	0,078	0,169	4,595	5,894	4,064	5,127
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,00	-0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2	0,01	0,00	0,13	0,12	0,00	-0,01	-0,01	0,02

Tabelle 54: Gamma Szenario 9-2: Charakteristische Größen für Cs-137 mit 25 % zusätzlicher Messunsicherheit im Vergleich zu EB und UR: oben: PG1; unten: PG2.

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	4,517	25,692	0,083	0,214	4,517	25,680	2,243	6,791
UR	4,517	25,692	0,083	0,215	4,517	25,680	2,243	6,791
PG1	4,510	25,690	0,086	0,221	4,510	25,680	2,240	6,780
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,00	-0,01	0,08	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1	-0,14	-0,01	3,30	3,12	-0,15	0,00	-0,14	-0,16

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	4,595	25,686	0,078	0,203	4,595	25,674	2,283	6,909
UR	4,595	25,685	0,078	0,203	4,595	25,673	2,283	6,909
PG2	4,595	25,685	0,078	0,203	4,596	25,670	2,280	6,912
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,00	-0,01	0,05	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2	0,00	0,00	0,13	0,25	0,00	-0,02	-0,14	0,05

4.5.11 Szenario 10: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur, ohne zusätzliche Unsicherheit

Szenario 10 untersucht die Behandlung einer Zerfallskorrektur bei nicht vorhandener Aktivität. Der Fokus liegt insbesondere auf dem Einfluss der Unsicherheit der Halbwertszeit bzw. den Auswirkungen, wenn diese nicht berücksichtigt wird. Als Beispiel dient Co-60 bei Auswertung von ausschließlich der 1173-keV-Linie. PG1 und PG2 werden separat mit EB und UR verglichen. PG2 berücksichtigt generell keine Unsicherheiten der Halbwertszeit. Um die Auswirkungen dessen exemplarisch zu testen wurde wie folgt vorgegangen: EKG und NWG wurden ermittelt, für eine Rückrechnung um ca. 2 Halbwertszeiten; anschließend wurde die Unsicherheit der Halbwertszeit $u(T_H)$ erhöht, sodass diese einen Beitrag von 10 % zur Unsicherheit der Aktivität liefern würde (der Beitrag ohne Modifikation ist nur 0,02 %).

Tabelle 55: Szenario Gamma 10: EKG und NWG der 1173-keV-Linie von Co-60 unter Berücksichtigung ausschließlich einer Zerfallskorrektur. Zur exemplarischen Darstellung des Einflusses der Unsicherheit der Halbwertszeit ($u(T_H)$) wurde diese erhöht, sodass sie 10 % zur Unsicherheit der Aktivität beitragen würde. Als Vergleichsreferenz dient EB mit normalem bzw. erhöhtem $u(T_H)$ Wert. Das Bezugsdatum liegt ca. 10 a (Halbwertszeit = 5,271 a) vor dem Messdatum.

Co-60 - PG1	EKG (Bq)	NWG (Bq)	Co-60 - PG2	EKG (Bq)	NWG (Bq)
EB wie PG1 - 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,2698	0,6140	EB - 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,3052	0,6853
EB wie PG1 - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	0,2698	0,6312	EB - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	0,3052	0,7045
UR wie PG1 - 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,2698	0,6139	UR - 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,3052	0,6852
UR wie PG1 - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	0,2698	0,6311	UR - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	0,3052	0,7044

PG1 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,2682	0,6102	PG2 - 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,3029	0,6762
PG1 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	0,2682	0,6272	PG2 - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht ¹	-	-
Abweichung (%)	EKG	NWG	Abweichung (%)	EKG	NWG
EB wie PG1 - 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,00	0,00	EB - 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,00	0,00
EB wie PG1 - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	0,00	0,00	EB - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	0,00	0,00
UR wie PG1 - 1173 keV $u(T_H)$ normal	0,00	-0,01	UR - 1173 keV $u(T_H)$ normal	-0,01	-0,01
UR wie PG1 - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	0,00	-0,01	UR - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	-0,01	-0,01
PG1 1173 keV $u(T_H)$ normal	-0,60	-0,60	PG2 - 1173 keV $u(T_H)$ normal	-0,76	-1,32
PG1 1173 keV $u(T_H)$ erhöht	-0,60	-0,63	PG2 - 1173 keV $u(T_H)$ erhöht ¹	-0,76	-4,01

¹ PG2 berücksichtigt keine Unsicherheit der Halbwertszeit, sodass für die Berechnung der Abweichung der Wert für „ $u(T_H)$ normal“ verwendet wurde

Die Ergebnisse sind in Tabelle 55 gegenübergestellt. Für PG1 liegt mit einer Abweichung <1 % eine sehr gute Übereinstimmung mit EB und UR vor. Auch für die erhöhte Unsicherheit der Halbwertszeit ändert sich die Abweichung nur im Bereich der Rundungsgenauigkeit. Für PG2 liegt ebenfalls eine sehr gute Übereinstimmung für die EKG vor ($u(T_H)$ hat keinen Einfluss auf die EKG). Für die NWG liegt für den normalen Wert von $u(T_H)$ ebenfalls eine gute Übereinstimmung von -1,3 % vor, die sich im Falle der erhöhten Unsicherheit auf eine Abweichung von -4,0 % ändert. Die erhöhte Unsicherheit der Halbwertszeit entspricht hier $u(T_H)/T_H = 7,6$ %. In der Praxis haben Halbwertszeiten typischerweise geringere relative Unsicherheiten, sodass es sich bei der Vernachlässigung von $u(T_H)$ in PG2 zwar um eine Abweichung handelt, diese für praktische Anwendungen aber keinen großen Einfluss hat.

4.5.12 Szenario 11: Mehrlinienstrahler, mit Aktivität, ohne Nulleffekt

Für Mehrlinienstrahler bestimmen beide untersuchten Programme zunächst die Aktivitäten A_j jeder Linie j und bilden anschließend einen gewichteten Mittelwert \bar{A} . Die Mittelwertbildung folgt der Gleichung:

$$\bar{A} = \frac{\sum_{i=1}^n A_i \cdot m_i}{\sum_{i=1}^n m_i}, \quad (38)$$

wobei sich die Programme in den gewählten Wichtungsfaktoren m_i unterscheiden. PG1 nutzt die Wichtungsfaktoren $m_i^{PG1} = 1 / (u^2(A_i))$, mit den Unsicherheiten der Einzelaktivitäten $u(A_i)$. Die Gesamtunsicherheit $u_{PG1}(\bar{A})$ ergibt sich dann als

$$u_{PG1}^2(\bar{A}) = \frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{u^2(A_i)}}. \quad (39)$$

Dabei werden auftretende Kovarianzen (z. B. die der Nachweiswahrscheinlichkeiten) jedoch nicht berücksichtigt, was dazu führt, dass die resultierende Gesamtunsicherheit zu klein ange-

geben wird. Insbesondere bei Nukliden mit vielen Linien, wie z. B. Eu-152, kann sich dadurch rechnerisch eine Unsicherheit ergeben, die geringer ist als die des zur Effizienzkalibration verwendeten Standards, was praktisch nicht möglich ist. Der beste Schätzer, dessen Unsicherheit und die Grenzen des Überdeckungsintervalls werden anschließend aus der gemittelten Aktivität und ihrer Unsicherheit berechnet. Auch hier ergeben sich Abweichungen durch die zu geringe Gesamtunsicherheit. Zur Veranschaulichung sind für dieses Szenario in Tabelle 56 für das Beispiel Co-60 die charakteristischen Größen sowohl der einzelnen Linien, als auch des Nuklids insgesamt angegeben.

Während der Bearbeitungszeit dieses Projekts wurde eine neuere Version zu PG1 veröffentlicht, in der dieses Problem adressiert wird und Korrelationen zwischen mehreren Linien eines Nuklids und die daraus resultierenden Unsicherheiten bei der Effizienzkalibration sowie bei der Bestimmung der mittleren Aktivität aus mehreren Linien eines Nuklids explizit berücksichtigt werden können.

Tabelle 56: Gamma Szenario 11-1: Gegenüberstellung von PG1 mit EB und UR. Zur Berechnung der Einzellinien wurden die Peakbereiche aus PG1 verwendet. Die Mittelung wurde für EB sowohl nach der Methode der kleinsten Quadrate (MKQ) (unter Annahme einer Korrelation von 90 % zwischen den Nachweeffizienzen der Linien) als auch nach der Methode von PG1 durchgeführt. Die Ergebnisse von PG1 lassen sich so reproduzieren, weichen aber für die Messunsicherheit und die Grenzen des Überdeckungsintervalls von MKQ ab.

Co-60	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - 1173 keV	1540,4	5,01	3,05	6,16	1540,3	5,01	1389,2	1691,5
EB - 1332 keV	1534,7	5,01	1,51	3,07	1534,7	5,01	1384,2	1685,3
UR - 1173 keV	1540,3	5,01	3,05	6,16	1540,3	5,01	1389,2	1691,5
UR - 1332 keV	1534,7	5,01	1,51	3,07	1534,7	5,01	1384,2	1685,3
PG1 - 1173 keV	1540,6	5,01	3,18	6,43	-	-	-	-
PG1 - 1332 keV	1534,8	5,01	1,58	3,21	-	-	-	-
EB - Nuklid MKQ	1537,4	4,88	-	-	1537,4	4,88	1390,5	1684,3
EB - Nuklid PG1	1537,5	3,54	1,58	3,21	1537,5	3,54	1430,8	1644,2
PG1 - Nuklid	1540,0	3,54	1,58	3,21	1540,0	3,54	1430,0	1640,0
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - 1173 keV	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - 1332 keV	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - 1173 keV	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - 1332 keV	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 - 1173 keV	0,01	0,00	4,43	4,42	-	-	-	-
PG1 - 1332 keV	0,00	0,00	4,57	4,54	-	-	-	-
EB - Nuklid MKQ	0,00	0,00	-	-	0,00	0,00	0,00	0,00

EB - Nuklid PG1	0,01	-27,42	4,57	4,54	0,01	-27,42	2,90	-2,39
PG1 - Nuklid	0,17	-27,41	4,57	4,54	0,17	-27,41	2,84	-2,63

Tabelle 57: Szenario Gamma 11-2: Gegenüberstellung von PG2 mit EB und UR. Zur Berechnung der Einzellinien wurden die Peakbereiche aus PG2 verwendet. Die Mittelung wurde für EB sowohl nach MKQ (unter Annahme einer Korrelation von 90 % zwischen den Nachweiseffizienzen der Linien) als auch nach der Methode von PG2 durchgeführt. Die Ergebnisse von PG2 lassen sich so reproduzieren. Die angegebenen Unsicherheiten sind jedoch überschätzt.

Co-60	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - 1173 keV	1543,2	5,01	3,89	7,85	1543,2	5,01	1391,8	1694,7
EB - 1332 keV	1536,2	5,01	1,97	4,00	1536,2	5,01	1385,5	1686,9
UR - 1173 keV	1543,2	5,01	3,89	7,85	1543,2	5,01	1391,8	1694,7
UR - 1332 keV	1536,2	5,01	1,98	4,00	1536,2	5,01	1385,5	1686,9
PG2 - 1173 keV	1543,0	-	3,89	-	-	-	-	-
PG2 - 1332 keV	1536,0	-	1,98	-	-	-	-	-
EB - Nuklid MKQ	1539,5	4,88	-	-	1539,5	4,88	1392,4	1686,7
EB - Nuklid PG2	1539,7	5,01	2,93	5,92	1539,7	5,01	1388,6	1690,8
PG2 - Nuklid	1539,7	5,00	2,94	5,93	1539,7	5,01	1388,4	1691,0
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - 1173 keV	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - 1332 keV	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - 1173 keV	0,00	0,00	0,00	-0,01	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - 1332 keV	0,00	0,00	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 - 1173 keV	-0,01	-	0,13	-	-	-	-	-
PG1 - 1332 keV	-0,01	-	0,11	-	-	-	-	-
EB - Nuklid MKQ	0,00	0,00	-	-	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Nuklid PG2	0,01	2,65	0,00	0,00	0,01	2,65	-0,27	0,24
PG2 - Nuklid	0,01	2,59	0,12	0,14	0,01	2,65	-0,29	0,26

PG2 nutzt als Wichtungsfaktoren in Gl. (38) die Emissionswahrscheinlichkeiten p_i der einzelnen Linien $m_i^{PG2} = p_i$. Dieses Mittelungsverfahren wird – sofern mehrere Linien eines Nuklids identifiziert wurden - außerdem verwendet für die Berechnung der Nuklidunsicherheiten und aller weiteren charakteristischen Größen: bester Schätzer, dessen Unsicherheit, EKG, NWG, untere und obere Grenze des Überdeckungsintervalls. In diesem Falle sind dann Nuklid-EKG und NWG größer als die kleinste Linien-EKG bzw. NWG. (Wird keine Linie identifiziert, nutzt PG2 die Liniengrenzen der ersten „Key-Line“ aus der Nuklidbibliothek – s. Szenario 3). Dabei werden ebenfalls keine Kovarianzen berücksichtigt, aber durch die Mittelung der Unsicherheiten wird eine Unterbewertung vermieden. Die Wahl der Emissionswahrscheinlichkeiten als Wichtungsfaktoren erscheint etwas willkürlich, da diese zwar mit den Messunsicherheiten korrelieren, aber der Einfluss anderer linien- oder energieabhängiger Faktoren, wie z. B. der Nachweiswahrscheinlichkeiten, vernachlässigt wird.

Die DIN EN ISO 11929:2021 befasst sich explizit mit dem Thema der Mittelung mehrerer Gammalinien in Teil 3, Anhang B.5. Die Berechnung der Gesamtaktivität als gewichteten Mittelwert, wie sie in PG1 angewendet wird, wird als Option erwähnt, jedoch mit dem Vermerk, dass die Gleichungen im Fall von Kovarianzen erweitert werden müssen. Es wird jedoch empfohlen, stattdessen die Methode der kleinsten Quadrate (MKQ) zu verwenden, mit der Kovarianzen korrekt berücksichtigt werden können. Für den Fall, dass die Kovarianzen verschwinden, ergibt sich daraus eine Mittelung wie in Gl. (38) und Gl. (39). In allen anderen Fällen unterschätzt PG1 systematisch die Nuklidunsicherheiten – und das umso mehr, je mehr Linien zur Mittelung verwendet werden. Die Mittelung der Unsicherheiten in PG2 liegt nahe an dem Fall vollständig korrelierter Unsicherheiten und überschätzt daher tendenziell die Nuklidunsicherheit.

Zum Vergleich der Methoden und zur Überprüfung der Berechnungen von PG1 und PG2 wurden in Tabelle 56 und Tabelle 57 am Beispiel Co-60 alle Verfahren gegenübergestellt. Die Einzelaktivitäten stimmen zwischen beiden Co-60-Linien und zwischen allen Auswertungen sehr gut überein, alle Abweichungen liegen im Bereich von Rundungsfehlern. Auch alle anderen charakteristischen Größen stimmen für die Einzellinien mit ausreichend Genauigkeit (<5 % Abweichung) überein. Für die gemittelten Nuklidwerte wird die Methode der kleinsten Quadrate als Referenz genutzt. Dabei wurde ein Korrelationskoeffizient von 90 % zwischen den Nachweiseffizienzen der einzelnen Linien angenommen.

4.5.13 Szenario 12: Mehrlinienstrahler, mit Aktivität, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur

In Erweiterung des Szenarios 11 werden zusätzlich eine Zerfallskorrektur und zusätzliche Messunsicherheiten in Höhe von 25 % betrachtet. Durch die zusätzliche Messunsicherheit, die nicht in die Mittelungsrechnung einfließt, hat die Über- bzw. Unterschätzung der gemittelten Unsicherheiten in diesem Fall keinen signifikanten Einfluss. Die Programme PG1 und PG2 liefern – unter Berücksichtigung der jeweiligen Methoden zur nuklidspezifischen EKG und NWG-Bestimmung – eine gute Übereinstimmung mit EB und UR innerhalb des geforderten 5 %-Bereichs (s. Tabelle 58).

Tabelle 58: Szenario Gamma 12: Vergleich von EB, UR, PG1 und PG2 für den Mehrlinienstrahler Co-60. Aufgrund der hohen zusätzlichen Unsicherheit sind die leichte Unter- (PG1) bzw. Überschätzung (PG2) der Messunsicherheit bei der Mittelung der Linienaktivitäten vernachlässigbar. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a (Halbwertszeit = 5,271 a) vor dem Messdatum.

Co-60	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - Nuklid MKQ	4408	25,5	-	-	4408	25,5	2208	6609
UR - Nuklid MKQ	4408	25,5	-	-	4408	25,5	2208	6609
EB - Nuklid PG1	4405	25,2	4,34	10,6	4405	25,2	2225	6585
PG1 - Nuklid	4410	25,3	4,54	11,1	4410	25,2	2230	6590
EB - Nuklid PG2	4412	25,5	8,40	20,5	4412	25,5	2207	6616
PG2 - Nuklid	4412	25,5	8,41	20,5	4412	25,5	2205	6620
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - Nuklid MKQ	0,00	0,00	-	-	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Nuklid MKQ	0,00	0,00	-	-	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Nuklid PG1	-0,07	-0,87	0,00	0,00	-0,07	-0,87	0,80	-0,36

PG1 - Nuklid	0,04	-0,87	4,68	4,72	0,04	-0,91	1,02	-0,29
EB - Nuklid PG2	0,08	0,10	0,00	0,00	0,08	0,10	-0,02	0,11
PG2 - Nuklid	0,08	0,11	0,14	0,19	0,08	0,07	-0,12	0,16

4.5.14 Szenario 13: Einlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, ohne Nulleffekt

Als Einlinienstrahler in einem Multiplett werden für dieses Szenario Eu-152 und Eu-154 betrachtet, jeweils unter Verwendung ausschließlich der dominanten Linie bei 121,8 keV bzw. 123,1 keV. Die betrachteten Peaks liegen energetisch zu nahe beieinander, um von einem Reinstgermanium-Detektor aufgelöst werden zu können, die Peakflächen müssen daher durch Entfaltung bestimmt werden. Dabei werden die Parameter einer mathematischen Beschreibung sowohl der Peaks als auch des Kontinuums so angepasst, dass die mathematische Funktion die Form des Spektrums bestmöglich wiedergibt. Dafür wird der Bereich B des Modells der Auswertung so zu B* erweitert, dass beide (bzw. alle) Peaks vollständig enthalten sind. Bereiche A1 und A2 sind weiterhin notwendig zur Bestimmung des Kontinuums und werden neben dem Bereich B* angefügt. Eine Möglichkeit zur Spektrumsanpassung mittels der Methode der kleinsten Quadrate wird in DIN EN ISO 11929-3 Anhang B.3 für eine Einzellinie bzw. B.4 für Doppellinien beschrieben. Die Entfaltungs-(/Fit-)routinen der zu untersuchenden Programme basieren ebenfalls auf der Methode der kleinsten Quadrate. Die Algorithmen wurden im Rahmen dieses Berichts nicht im Detail nachempfunden, sondern nur qualitativ überprüft. Dazu wurde insbesondere die Nettopeakfläche des Summenpeaks, die mittels Trapezmethode bestimmt werden kann, mit der Summe der Peakflächen aus der Anpassung verglichen. Die Abweichungen liegen in diesem Szenario bei <2,5 % – daher werden die Anpassungen als geeignet angesehen und im Weiteren wird mit den daraus resultierenden Peak- und Kontinuumsflächen weitergerechnet.

Es ist wichtig zu beachten, dass beide Programme sehr sensitiv auf eine genaue Peakformkalibration sind. PG1 bietet die Möglichkeit, eine gewisse Toleranz in der Peakbreite der Anpassung zu erlauben, PG2 hingegen verwendet starr die Halbwertsbreiten aus der zu Grunde liegenden Kalibration.

Die aus den Anpassungen resultierenden Peak- und Kontinuumsflächen n_{Peak} und n_{Kont} werden in das in Kap. 4.5.1 beschriebene Modell der Auswertung wie folgt integriert:

- die Bruttofläche entspricht der Summe der beiden Teilflächen: $n_g = n_{\text{Peak}} + n_{\text{Kont}}$
- die Kontinuumsfläche wird willkürlich auf die Teilflächen n_1 und n_2 aufgeteilt (für die Berechnung spielt nur die Summe aus n_1+n_2 eine Rolle, aber in UR sollten alle Flächen verschieden von null sein)
- das Kanalanzahlverhältnis der Peak- und Kontinuumsbereiche c_0 wird 1 gesetzt:
 $c_0 = 1$
- Unsicherheiten aus der Entfaltung, die signifikant über die statistischen Unsicherheiten hinausgehen, werden als zusätzliche Messunsicherheiten ergänzt.

Um die Programme auf die Auswertung einer einzelnen Linie jedes Nuklids zu beschränken, wurde in den Nuklidbibliotheken bei allen anderen Linien die Option angewählt, diese Linie nicht für den Mittelwert zu verwenden. Damit ergeben sich für PG1 sehr gute Übereinstimmungen zwischen EB, UR und PG1 (s. Tabelle 59), außer für EKG und NWG des Nuklids Eu-152. Dies ist dem Umstand geschuldet, dass PG1 stets die niedrigsten Liniengrenzen auch für das gesamte Nuklid verwendet, wie in Kap. 4.5.5 beschrieben. Obwohl die 1408-keV-Linie des Eu-

152 für diese Auswertung als „nicht für den Mittelwert zu verwenden“ markiert wurde, wurden offensichtlich dennoch EKG und NWG dieser Linie für das Nuklid angegeben.

Die oben beschriebene Anpassung des Modells der Auswertung liefert für PG1 eine sehr gute Übereinstimmung aller Größen und wurde daher auf gleiche Weise auch für PG2 angewendet. Auch für PG2 können mit EB und UR fast alle charakteristischen Größen mit sehr guter Genauigkeit reproduziert werden, mit Ausnahme von EKG und NWG, für die eine signifikante Überschätzung durch PG2 vorliegt (s. Tabelle 60). Die Auswertungen mit EB und UR haben sich in den bisherigen Szenarien als robust erwiesen. Die Anpassung des Modells der Auswertung liefert für PG1 ebenfalls gute Ergebnisse, sodass ein Rechenfehler unwahrscheinlich scheint. Eine Fehlinterpretation der Ausgabegrößen von PG2 erscheint ebenfalls unwahrscheinlich, da die Aktivität und ihre Unsicherheit ebenfalls exakt reproduziert werden können. Die Ursache für die Abweichung konnte nicht festgestellt werden.

Tabelle 59: Szenario Gamma 13-1: Eu-152 und Eu-154 werden als Einlinienstrahler behandelt, indem in der Nuklibibliothek alle Linien außer die 121,8-keV-Linie (Eu-152) und die 123,1-keV-Linie (Eu-154) aus der Mittelwertbildung ausgeschlossen werden. In PG1 wird dennoch die 1408-keV-Linie für die nuklidbezogenen EKG und NWG verwendet. Für alle anderen charakteristischen Größen liegt eine sehr gute Übereinstimmung zwischen PG1 und EB sowie UR vor.

Eu-152/154	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB – Eu-152	10839	5,02	4,45	8,97	10839	5,02	9772	11906
EB – Eu-154	777,3	5,16	2,52	5,08	777,3	5,16	698,7	855,9
UR - Eu-152	10839	5,02	4,45	8,97	10839	5,02	9772	11906
UR - Eu-154	777,3	5,16	2,52	5,08	777,3	5,16	698,7	855,9
PG1 – 121,8 keV	10800	5,02	4,41	8,90	-	-	-	-
PG1 – 1408 keV	12200	5,02	4,11	8,38	-	-	-	-
PG1 - Eu-152	10800	5,02	4,11	8,38	10800	5,02	9760	11900
PG1 - Eu-154	778,0	5,16	2,52	5,09	778,0	5,16	699,0	856,0
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-152	0,00	0,00	-0,02	-0,01	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-154	0,00	0,00	-0,02	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 – 121,8 keV	-0,36	-0,03	-0,85	-0,80	-	-	-	-
PG1 – 1408 keV	-	-0,03	-7,60	-6,59	-	-	-	-

Eu-152/154	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
PG1 - Eu-152	-0,36	-0,03	-7,60	-6,59	-0,36	-0,03	-0,12	-0,05
PG1 - Eu-154	0,09	0,02	0,06	0,13	0,09	0,02	0,04	0,01

Tabelle 60: Szenario Gamma 13-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die als Einlinienstrahler behandelten Nuklide Eu-152 und Eu-154. In PG2 werden EKG und NWG deutlich überschätzt, für alle anderen Werte liegt eine sehr gute Übereinstimmung vor.

Eu-152/154	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - Eu-152	11042	5,02	5,76	11,62	11042	5,02	9955	12129
EB - Eu-154	756,1	5,23	11,09	22,35	756,1	5,23	678,6	833,7
UR - Eu-152	11042	5,02	5,76	11,61	11042	5,02	9955	12129
UR - Eu-154	756,1	5,23	11,09	22,35	756,1	5,23	678,6	833,7
PG2 - Eu-152	11042	5,02	8,41	16,95	11042	5,02	9954	12130
PG2 - Eu-154	756,2	5,23	11,78	23,73	756,2	5,23	678,5	833,8
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-152	0,00	0,00	-0,02	-0,05	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-154	0,00	0,00	0,01	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2 - Eu-152	0,00	0,00	45,97	45,92	0,00	-0,01	-0,01	0,01
PG2 - Eu-154	0,00	0,00	6,23	6,18	0,00	0,00	-0,01	0,02

4.5.15 Szenario 14: Einlinienstrahler, mit Aktivität, im Multipllett, ohne Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur

Tabelle 61: Szenario Gamma 14-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 = 13,522, Eu-154 = 8,601 a).

Eu-152/154	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - Eu-152	16338	25,50	6,70	16,29	16339	25,49	8176	24504
EB - Eu-154	1482	25,53	4,80	11,68	1482	25,52	740,7	2223
UR - Eu-152	16338	25,50	6,70	16,30	16339	25,49	8176	24504
UR - Eu-154	1482	25,53	4,80	11,68	1482	25,52	740,7	2223
PG1 - Eu-152	16300	25,50	6,70	16,30	16300	25,49	8160	24500
PG1 - Eu-154	1480	25,53	4,84	11,80	1480	25,52	739,0	2220
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG

EB - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-154	0,00	0,00	-0,01	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 - Eu-152	-0,23	0,00	-0,06	0,05	-0,24	0,00	-0,19	-0,01
PG1 - Eu-154	-0,12	0,01	0,82	1,07	-0,12	0,01	-0,23	-0,14

Tabelle 62: Szenario Gamma 14-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 = 13,522, Eu-154 = 8,601 a).

Eu-152/154	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - Eu-152	16644	25,50	8,68	21,1	16645	25,49	8329	24963
EB - Eu-154	1441	25,54	21,14	51,3	1441	25,53	720,1	2163
UR - Eu-152	16644	25,50	8,68	21,1	16645	25,49	8329	24963
UR - Eu-154	1441	25,54	21,14	51,3	1442	25,53	720,1	2163
PG2 - Eu-152	16644	25,50	12,67	30,8	16645	25,49	8317	24975
PG2 - Eu-154	1441	25,54	22,45	54,6	1442	25,53	719,1	2164
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-152	0,00	0,00	-0,01	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-154	0,00	0,00	0,01	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2 - Eu-152	0,00	0,00	45,90	46,06	0,00	0,00	-0,14	0,05
PG2 - Eu-154	0,00	-0,01	6,21	6,30	0,00	0,00	-0,14	0,05

Wie in Szenario 13 werden Eu-152 und Eu-154 als Einlinienstrahler behandelt, indem alle außer den dominanten Linien bei 121,8 keV bzw. 123,1 keV aus der Mittelwertbildung ausgeschlossen werden. Weiterhin werden eine Zerfallskorrektur sowie eine zusätzliche Messunsicherheit von 25 % berücksichtigt. Die Ergebnisse von PG1 liefern eine sehr gute Übereinstimmung mit EB und UR (siehe Tabelle 61). Für PG2 tritt wiederum eine deutliche Überschätzung von EKG und NWG auf, alle anderen Werte stimmen sehr gut überein (s. Tabelle 62).

4.5.16 Szenario 6: Einlinienstrahler, ohne Aktivität, im Multipllett, mit Nulleffekt

Als Einlinienstrahler im Multipllett werden Eu-152 und Eu-154 betrachtet, unter Berücksichtigung ausschließlich der dominanten Linien bei 121,8 keV bzw. 123,1 keV. Das Modell der Auswertung wird wie in Kapitel 4.5.14 beschrieben modifiziert um die Ergebnisse der Entfaltung von PG1 bzw. PG2 nutzen zu können. Überprüft wird, wie die charakteristischen Grenzen berechnet werden, wenn die vorhandenen Zählraten beider Linien ausschließlich dem Nulleffekt entsprechen, bzw. wenn eine Linie nicht erkannt wird. Dazu wurde dasselbe Spektrum je dreimal ausgewertet: einmal ohne Nulleffektabzug, einmal mit Nulleffektabzug und einmal ohne Nulleffektabzug, dafür mit so angepassten Peaksuchparametern, dass die Eu-154-Linie nicht gefunden wurde.

Bei den Auswertungen mit PG1 ergeben sich für Eu-152 und Eu-154 mit einer Ausnahme sehr gute Übereinstimmungen mit EB und UR, unter Berücksichtigung des jeweils anzuwendenden

den Modells. Sind für beide Peaks Nettoflächen vorhanden, werden die Peaks entfaltet und das modifizierte Modell der Auswertung (s. Kap. 4.5.14) verwendet. Entsprechen die Peaks jedoch ausschließlich dem Nulleffekt, nutzt PG1 stattdessen das ursprüngliche Modell ohne Entfaltung, in dem PG1 die EKG und NWG aus der Bruttofläche des Bereichs B jedes einzelnen Peaks berechnet. Dies lässt sich anhand der Unterschiede in EKG und NWG zwischen dem modifizierten Modell mit Nulleffektabzug und der Berechnung „wie PG1“ für Eu-152 (s. Tabelle 63), aber insbesondere für Eu-154 (s. Tabelle 64) erkennen. Für Eu-154 sind EKG und NWG mit Nulleffektabzug nahezu um einen Faktor zwei höher als ohne Nulleffektabzug. Das ist darin begründet, dass PG1 im Falle vorhandener Nettopeaks sowohl die Peakflächen als auch die Kontinuumsflächen zum jeweiligen Peak aus einem simultanen Fit der Bereiche A1, A2 und B* des Multipletts berechnet, ohne den jeweils anderen Peak explizit als Störung abzuziehen. Der Einfluss der Nachbarpeaks spiegelt sich dabei nur in den Unsicherheiten der Fit-Parameter und damit den berechneten Flächen wider. Für einen simultanen Fit beider Peaks scheint dies auch gerechtfertigt. Im Falle nicht-vorhandener Nettoflächen werden EKG- und NWG jedoch aus den Bruttoflächen des Bereichs B jedes Einzelpeaks berechnet wodurch die Zählereignisse des jeweils anderen Peaks implizit als Störung berücksichtigt werden. Wird Eu-154 nicht erkannt, werden alle charakteristischen Grenzen für Eu-152 wieder nach dem unmodifizierten Modell der Auswertung wie in Kap. 4.5.1 berechnet (Trapezmethode) und die Zählereignisse des Eu-154 Peaks werden dem Eu-152 Peak zugerechnet. Die EKG und NWG für Eu-154 werden wieder aus der Bruttofläche des Bereichs B berechnet. D. h. je nachdem ob Eu-154 vom Peaksuchalgorithmus gefunden wird oder nicht, unterscheiden sich EKG und NWG aufgrund der unterschiedlichen Methoden um Faktoren – auch wenn jede Methode in sich konsistente und plausible Grenzen liefert.

Tabelle 63: Szenario Gamma 6-1: Vergleich von PG1 mit den Berechnungen in EB und UR für Eu-152 als Einlinienstrahler im Multiplett. Betrachtet werden die Fälle eines vorhandenen Netto-Peaks, eines Peaks der dem Nulleffekt entspricht und der Nicht-Identifikation von Eu-154. Da EB und UR exakt übereinstimmen sind nur die Abweichungen nur zwischen PG1 und EB aufgelistet.

Eu-152 - PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB ohne Nulleffekt	5,662	5,86	0,1426	0,2976	5,662	5,86	5,012	6,312
EB mit Nulleffekt – mod. Modell	-	-	0,3947	0,8052	-	-	-	-
EB mit Nulleffekt - wie PG1	-	-	0,3846	0,7848	-	-	-	-
EB ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	6,179	6,10	0,2443	0,5024	6,178	6,10	5,440	6,917
UR ohne Nulleffekt	5,662	5,86	0,1426	0,2976	5,662	5,86	5,012	6,312
UR mit Nulleffekt	-	-	0,3946	0,8052	-	-	-	-
UR ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	6,179	6,10	0,2443	0,5024	6,179	6,10	5,440	6,917
PG1 ohne Nulleffekt	5,640	5,79	0,1420	0,2960	5,640	5,79	5,000	6,280
PG1 mit Nulleffekt	-	-	0,3845	0,7848	-	-	-	-

Eu-152 - PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
PG1 ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	6,150	6,10	0,2430	0,5000	6,150	6,10	5,420	6,890
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
PG1 ohne Nulleffekt	-0,38	-1,18	-0,41	-0,53	-0,39	-1,18	-0,23	-0,51
PG1 mit Nulleffekt	-	-	-2,57	-2,53	-	-	-	-
PG1 ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-0,46	0,02	-0,54	-0,48	-0,45	0,02	-0,37	-0,39

Tabelle 64: Szenario Gamma 6-2: Vergleich von PG1 mit EB und UR für Eu-154 als Einlinienstrahler im Multiplett. Betrachtet werden die Fälle eines vorhandenen Netto-Peaks, eines Peaks der dem Nulleffekt entspricht und der Nicht-Identifikation von Eu-154. Da EB und UR exakt übereinstimmen sind nur die Abweichungen nur zwischen PG1 und EB aufgelistet.

Eu-154 - PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB ohne Nulleffekt	0,3125	20,80	0,0927	0,1936	0,3125	20,80	0,1851	0,4399
EB mit Nulleffekt - mod. Modell	-	-	0,1296	0,2680	-	-	-	-
EB mit Nulleffekt – wie PG1	-	-	0,2162	0,4425	-	-	-	-
EB ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-	-	0,2162	0,4425	-	-	-	-
UR ohne Nulleffekt	0,3125	20,80	0,0927	0,1936	0,3125	20,80	0,1851	0,4399
UR mit Nulleffekt	-	-	0,2162	0,4424	-	-	-	-
UR ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-	-	0,2162	0,4424	-	-	-	-
PG1 ohne Nulleffekt	0,3130	15,63	0,0927	0,1940	0,3130	15,63	0,2170	0,4080
PG1 mit Nulleffekt	-	-	0,2162	0,4425	-	-	-	-
PG1 ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-	-	0,2160	0,4420	-	-	-	-
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
PG1 ohne Nulleffekt	0,16	-24,84	0,00	0,20	0,16	-24,84	17,22	-7,25
PG1 mit Nulleffekt	-	-	0,00	0,00	-	-	-	-
PG1 ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-	-	-0,11	-0,11	-	-	-	-

Tabelle 65: Szenario Gamma 6-3: Vergleich von PG2 mit den Berechnungen in EB und UR für Eu-152 als Einlinienstrahler im Multiplett. Betrachtet werden die Fälle eines vorhandenen Netto-Peaks, eines Peaks der dem Nulleffekt entspricht und der Nicht-Identifikation von Eu-154. Da EB und UR exakt übereinstimmen sind nur die Abweichungen nur zwischen PG1 und EB aufgelistet.

Eu-152 - PG2	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB ohne Nulleffekt	5,942	5,87	0,1638	0,3403	5,942	5,87	5,258	6,626

EB mit Nulleffekt	-	-	0,4270	0,8707	-	-	-	-
EB ohne Nulleffekt								
Eu-154 nicht id.	6,459	7,00	0,4489	0,9143	6,459	7,00	5,573	7,345
UR ohne Nulleffekt	5,942	5,87	0,1638	0,3403	5,942	5,87	5,258	6,626
UR mit Nulleffekt	-	-	0,4270	0,8703	-	-	-	-
UR ohne Nulleffekt								
Eu-154 nicht id.	6,459	7,00	0,4489	0,9143	6,459	7,00	5,573	7,345
PG2 ohne Nulleffekt	5,943	5,87	0,2171	0,4476	5,943	5,87	5,258	6,628
PG2 mit Nulleffekt			0,4888	0,9947				
PG2 ohne Nulleffekt								
Eu-154 nicht id.	6,459	7,00	0,4494	0,9155	6,459	7,00	5,572	7,346
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
PG2 ohne Nulleffekt	0,02	0,00	32,52	31,52	0,02	-0,01	0,01	0,04
PG2 mit Nulleffekt	-	-	14,46	14,24	-	-	-	-
PG2 ohne Nulleffekt								
Eu-154 nicht id.	0,00	0,00	0,12	0,13	0,00	0,00	-0,02	0,02

Tabelle 66: Szenario Gamma 6-4: Vergleich von PG1 mit EB und UR für Eu-154 als Einlinienstrahler im Multiplett. Betrachtet werden die Fälle eines vorhandenen Netto-Peaks, eines Peaks der dem Nulleffekt entspricht und der Nicht-Identifikation von Eu-154. Die Werte der EB für den Fall, dass Eu-154 nicht identifiziert wurde berücksichtigen nicht den Eu-152 Störpeak und dienen nur zum Vergleich, nicht als Referenz. Sie stehen deshalb in Klammern. Da EB und UR exakt übereinstimmen sind nur die Abweichungen nur zwischen PG1 und EB aufgelistet.

Eu-154 - PG2	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB ohne Nulleffekt	0,2625	55,44	0,2346	0,4795	0,2743	48,81	0,03592	0,5500
EB mit Nulleffekt	-	-	0,3401	0,6920	-	-	-	-
EB ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-	-	(0,1433)	(0,2955)	-	-	-	-
UR ohne Nulleffekt	0,2625	55,44	0,2346	0,4794	0,2744	48,81	0,03592	0,5500
UR mit Nulleffekt	-	-	0,3401	0,6919	-	-	-	-
UR ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-	-	-	-	-	-	-	-
PG2 ohne Nulleffekt	0,2613	55,69	0,2349	0,4801	0,2733	48,94	0,03523	0,5492
PG2 mit Nulleffekt	-	-	0,09430	0,1969	-	-	-	-
PG2 ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-	-	0,2029	0,4157	-	-	-	-
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
PG2 ohne Nulleffekt	-0,45	0,44	0,13	0,14	-0,35	0,26	-1,93	-0,15
PG2 mit Nulleffekt	-	-	-72,27	-71,55	-	-	-	-
PG2 ohne Nulleffekt Eu-154 nicht id.	-	-	Keine Referenz	Keine Referenz	-	-	-	-

Die einzige Abweichung ergibt sich in der Messunsicherheit von Eu-154 (und den damit korre-

lierten Größen). Da für die EB die Ausgabegrößen von PG1 verwendet wurden und alle anderen Werte im Rahmen von Rundungen übereinstimmen, ist der Ursprung dieser Abweichung unbekannt.

4.5.17 Szenario 15: Einlinienstrahler, mit Aktivität, mit Nulleffekt

Zur Überprüfung des Abzugs eines Nulleffekts (Peak-Untergrundes) bei einem Einlinienstrahler wird Cs-137 betrachtet. Die Nulleffekt-Zählrate beträgt ca. 9 % der Nettozählrate. In diesem Falle nutzt PG1 das ursprüngliche Modell der Auswertung (Trapezmethode) und berechnet EKG und NWG aus den Ereigniszahlen der Bereiche A1 und A2. Daraus ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit EB und UR. Für PG2 wurde, analog zu Szenario 5, zunächst der Fall ohne Nulleffektabzug betrachtet. In diesem Fall ergibt sich für alle charakteristischen Größen eine sehr gute Übereinstimmung zwischen PG2 und EB. Der zusätzliche Nulleffektabzug resultiert in einer guten Übereinstimmung für die meisten Größen, einem leichten Unterschied in der Messunsicherheit, aber einer deutlichen Abweichung in EKG und NWG, s. Tabelle 67.

Tabelle 67: Szenario Gamma 15: Der Einlinienstrahler Cs-137 wurde mit Nulleffekt-Abzug ausgewertet und für die Programme PG1 (oben) und PG2 (unten) jeweils separat mit EB und UR verglichen. Zum Vergleich ist für PG2 auch eine Auswertung ohne Nulleffekt aufgelistet.

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	4,103	6,100	0,108	0,228	4,103	6,100	3,613	4,594
UR	4,103	6,103	0,108	0,228	4,103	6,103	3,612	4,594
PG1	4,098	6,110	0,110	0,232	4,100	6,110	3,610	4,590
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,05	0,00	0,00	0,00	0,05	-0,01	0,00
PG1	-0,12	0,17	2,00	1,90	-0,08	0,17	-0,07	-0,08

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - ohne Nulleff.	4,595	5,894	0,078	0,168	4,595	5,894	4,064	5,126
PG2 - ohne Nulleff.	4,595	5,894	0,078	0,169	4,595	5,894	4,064	5,127
EB	4,166	6,072	0,106	0,223	4,166	6,072	3,670	4,661
UR	4,166	6,077	0,106	0,223	4,166	6,077	3,670	4,662
PG2	4,166	6,156	0,124	0,260	4,166	6,156	3,662	4,669
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - ohne Nulleff.	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2 - ohne Nulleff.	0,00	0,00	0,13	0,12	0,00	-0,01	-0,01	0,02

EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,08	-0,05	-0,03	0,00	0,08	-0,01	0,01
PG2	0,00	1,39	17,20	16,41	0,00	1,39	-0,21	0,17

4.5.18 Szenario 16: Einlinienstrahler, mit Aktivität, mit Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur

In Erweiterung des Szenarios 15 werden eine Zerfallskorrektur und eine zusätzliche Messunsicherheiten in Höhe von 25 % betrachtet. Qualitativ ergibt sich ein ähnliches Bild wie in Szenario 15: PG1 stimmt gut überein mit EB und UR; PG2 gibt zu große EKG und NWG an, stimmt sonst aber ebenfalls gut überein mit EB und UR.

Tabelle 68: Szenario Gamma 16: Vergleich von PG1 (oben) und PG2 (unten) mit EB und UR für einen Einlinienstrahler mit Nulleffektabzug, Zerfallskorrektur und zusätzlicher Unsicherheit. Das Bezugsdatum liegt ca. eine Halbwertszeit (30,018 a) vor dem Messdatum.

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	8,204	25,73	0,215	0,548	8,204	25,72	4,068	12,34
UR	8,204	25,73	0,215	0,548	8,204	25,72	4,068	12,34
PG1	8,190	25,74	0,220	0,559	8,190	25,72	4,060	12,30
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,00	-0,02	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1	-0,17	0,03	2,16	2,00	-0,18	-0,01	-0,19	-0,34

Cs-137	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB	8,329	25,73	0,211	0,538	8,329	25,72	4,131	12,53
UR	8,329	25,73	0,211	0,538	8,329	25,72	4,131	12,53
PG2	8,329	25,75	0,247	0,627	8,330	25,73	4,122	12,54
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR	0,00	0,01	-0,02	0,06	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2	0,00	0,09	17,22	16,57	0,00	0,06	-0,22	0,08

4.5.19 Szenario 17: Einlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, mit Nulleffekt

Tabelle 69: Szenario Gamma 17-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR für die Hauptlinien von Eu-152 und Eu-154. Es wird für alle Größen eine sehr gute Übereinstimmung erzielt.

Eu-152/154 PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - Eu-152	8128	5,02	10,25	20,65	8128	5,02	7324	8924

EB - Eu-154	583,0	5,17	3,380	6,818	583,0	5,17	523,9	642,1
UR - Eu-152	8128	5,02	10,24	20,65	8128	5,02	7328	8928
UR - Eu-154	583,0	5,17	3,379	6,818	583,0	5,17	523,9	642,1
PG1 - Eu-152	8122	5,02	10,23	20,63	8120	5,02	7328	8928
PG1 - Eu-154	583,3	5,17	3,380	6,820	583,0	5,17	524,0	642,0
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-152	0,00	0,00	-0,06	0,01	0,00	0,00	0,05	0,05
UR - Eu-154	0,00	0,00	-0,02	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 - Eu-152	-0,07	0,00	-0,11	-0,11	-0,10	-0,04	0,05	0,05
PG1 - Eu-154	0,05	-0,03	0,01	0,02	0,00	0,02	0,01	-0,01

Als Einlinienstrahler im Multiplett werden Eu-152 und Eu-154 betrachtet, unter Verwendung ausschließlich der jeweils dominanten Gamma-Linie bei 121,8 keV bzw. 123,1 keV. Die Peak- und Kontinuumsflächen werden durch Entfaltung mittels PG1 und PG2 bestimmt und das Modell der Auswertung wird wie in Szenario 13 (Kap. 4.5.14) beschrieben leicht modifiziert. Zur Überprüfung der Berechnungen wurde der Nulleffekt angepasst und entspricht ca. 25 % der Netto-Zählrate.

Auf Grundlage des modifizierten Modells der Auswertung ergibt sich eine gute Übereinstimmung zwischen PG1, UR und EB (Tabelle 69). Für PG2 ergeben sich Abweichungen für die EKG und NWG für Eu-152 zu höheren und für Eu-154 zu niedrigeren Werten. Alle anderen Größen stimmen sehr gut überein (s. Tabelle 70).

Tabelle 70: Szenario Gamma 17-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die Hauptlinien von Eu-152 und Eu-154. Abweichungen liegen nur für EKG und NWG vor.

Eu-152/154 PG2	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - Eu-152	8054	5,02	11,36	22,89	8054	5,02	7261	8846
EB - Eu-154	627,7	5,30	12,76	25,72	627,7	5,30	562,4	692,9
UR - Eu-152	8054	5,02	11,36	22,89	8054	5,02	7261	8846
UR - Eu-154	627,7	5,30	12,76	25,71	627,7	5,30	562,5	692,9
PG2 - Eu-152	8054	5,02	12,67	25,52	8054	5,02	7260	8848
PG2 - Eu-154	627,7	5,30	11,88	23,95	627,7	5,30	562,4	693,0
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-152	0,00	0,00	-0,01	-0,02	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-154	0,00	0,00	-0,01	-0,03	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2 - Eu-152	0,00	0,01	11,52	11,47	0,00	0,01	-0,01	0,02
PG2 - Eu-154	0,00	0,02	-6,91	-6,87	0,00	0,03	-0,02	0,02

4.5.20 Szenario 18: Einlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, mit Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur

4.5.21

Tabelle 71: Szenario Gamma 18-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR für die Hauptlinien von Eu-152 und Eu-154. Es wird für alle Größen eine sehr gute Übereinstimmung erzielt. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 = 13,522, Eu-154 = 8,601 a).

Eu-152/154	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - Eu-152	12244	25,50	15,46	37,54	12245	25,49	6127	18363
EB - Eu-154	1108	25,53	6,469	15,72	1108	25,52	553,7	1662
UR - Eu-152	12246	25,50	15,46	37,55	12246	25,49	6128	18366
UR - Eu-154	1108	25,53	6,469	15,73	1108	25,52	553,8	1662
PG1 - Eu-152	12233	25,50	15,45	37,52	12200	25,49	6120	18300
PG1 - Eu-154	1108	25,53	6,473	15,74	1110	25,52	554,0	1660
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-152	0,02	0,00	-0,02	0,03	0,01	0,00	0,01	0,01
UR - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 - Eu-152	-0,09	0,00	-0,10	-0,06	-0,36	0,00	-0,11	-0,34
PG1 - Eu-154	0,04	0,00	0,06	0,10	0,19	0,01	0,05	-0,13

In Erweiterung des Szenarios 17 werden zusätzlich eine Zerfallskorrektur und zusätzliche Messunsicherheiten in Höhe von 25 % betrachtet. In beiden Programmen, PG1 und PG2, werden sowohl die Zerfallskorrektur als auch die zusätzliche Messunsicherheit korrekt eingerechnet, s. Tabelle 71 und Tabelle 72. PG2 berücksichtigt keine Unsicherheit der Halbwertszeit, die in diesem Szenario aber vernachlässigbar ist.

Tabelle 72: Szenario Gamma 18-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die Hauptlinien von Eu-152 und Eu-154. Abweichungen liegen nur für EKG und NWG vor. Das Bezugsdatum liegt 8,0 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 = 13,522, Eu-154 = 8,601 a).

Eu-152/154	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - Eu-152	12140	25,50	17,13	41,58	12140	25,49	6075	18207
EB - Eu-154	1197	25,56	24,33	59,06	1197	25,55	597,4	1796
UR - Eu-152	12140	25,50	17,12	41,59	12140	25,49	6075	18207
UR - Eu-154	1197	25,56	24,32	59,08	1197	25,54	597,4	1796
PG2 - Eu-152	12140	25,50	19,09	46,39	12140	25,49	6066	18216
PG2 - Eu-154	1197	25,56	22,65	55,06	1197	25,55	596,6	1797
Abw. (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

UR - Eu-152	0,00	0,00	-0,03	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - Eu-154	0,00	0,00	-0,02	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2 - Eu-152	0,00	0,00	11,47	11,58	0,00	0,00	-0,14	0,05
PG2 - Eu-154	0,00	0,01	-6,89	-6,78	0,00	0,02	-0,14	0,05

4.5.22 Szenario 19: Mehrlinienstrahler, mit Aktivität, im Multipllett, mit Nulleffekt

Als Mehrlinienstrahler wurden wieder die Europium-Isotope betrachtet, jetzt unter Verwendung mehrerer gut identifizierbarer Linien: Eu-152: 121,8 keV, 344,3 keV und 964,1 keV; Eu-154: 123,1 keV, 723,3 keV und 1274,43 keV. Dabei liegen bei beiden Isotopen die beiden erstgenannten Linien in einem Multipllett vor, die dritte wurde als Singlett gefunden. PG2 hat die Linien bei 723,3 keV und 964,1 keV als „Ausreißer“ verworfen (aufgrund der Formkalibration scheint eine schlechte Peakanpassung vorzuliegen). Dies ist für das Szenario nicht essentiell, da für jedes Nuklid noch andere Linien vorliegen, daher wurde die Formkalibration nicht angepasst, um eine bessere Vergleichbarkeit mit anderen Szenarien zu ermöglichen. Stattdessen wurde die reduzierte Anzahl an Linien in der Berechnung der Ergebnisse mit EB und UR berücksichtigt.

Die Peak- und Kontinuumsflächen werden durch Entfaltung mittels PG1 und PG2 bestimmt und das Modell der Auswertung wird wie in Szenario 13 (Kap. 4.5.14) beschrieben leicht modifiziert. Zur Überprüfung der Berechnungen wurde der Nulleffekt angepasst und entspricht ca. 25 % der Netto-Zählrate.

Beide Programme werten zunächst die einzelnen Linienaktivitäten aus und bilden dann einen Mittelwert für das jeweilige Nuklid, wie in Kap. 4.5.12 beschrieben. Zum Vergleich wurden für EB und UR das gleiche Vorgehen und die gleichen Mittelungsmethoden wie im jeweiligen Programm angewandt. Für PG1 ergeben sich sehr gute Übereinstimmungen für alle Größen (s. Tabelle 73). Durch die Verwendung von drei Linien pro Nuklid fällt jedoch deutlich auf, wie sehr die Messunsicherheit des Nuklids durch das Mittelungsverfahren reduziert wird (alle Nachweisseffizienzen wurden eingangs mit 5% Unsicherheit festgelegt – was in der Praxis typischerweise durch die Unsicherheit der Aktivität des Kalibrierstandards dominiert ist). Dadurch können insbesondere die so berechneten Unsicherheiten geringer sein als die des Kalibrierstandards. In der inzwischen veröffentlichten neueren Version von PG1 können Korrelationen berücksichtigt werden, sodass die Unsicherheiten in diesem Szenario bei vollständiger Korrelation der Linienunsicherheiten 5,1 % für Eu-152 und Eu-154 betragen, anstelle von 2,9 % und 3,0 %!

Tabelle 73: Szenario Gamma 19-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR für die Mehrlinienstrahler Eu-152 und Eu-154 in Multipletts, mit Nulleffektkorrektur.

Eu-152/154 PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - PG1 - Eu-152	8602	2,91	10,25	20,65	8602	2,91	8112	9092
EB - PG1 - Eu-154	573,2	3,02	3,382	6,822	573,2	3,02	539,3	607,2

Eu-152/154 PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
UR - PG1 - Eu-152	8602	2,91	10,24	20,65	8602	2,91	8112	9092
UR - PG1 - Eu-154	573,2	3,02	3,379	6,818	573,2	3,02	539,3	607,2
PG1 - Eu-152	8600	2,91	10,20	20,60	8600	2,91	8110	9090
PG1 - Eu-154	573,0	3,00	3,380	6,820	573,0	3,00	540,0	607,0
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - PG1 - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - PG1 - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - PG1 - Eu-152	0,00	0,00	-0,06	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - PG1 - Eu-154	0,00	0,00	-0,08	-0,06	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 - Eu-152	-0,02	0,17	-0,45	-0,23	-0,02	0,17	-0,03	-0,02
PG1 - Eu-154	-0,04	-0,60	-0,05	-0,03	-0,04	-0,60	0,12	-0,02

PG2 erreicht wiederum eine gute Übereinstimmung für alle Werte außer EKG und NWG (s. Tabelle 74). Hier ergeben sich Abweichungen wie in anderen Szenarien mit Multipletts bereits beobachtet. Durch das Mittelungsverfahren von PG2 wird eine Unterschätzung der Messunsicherheiten vermieden.

Tabelle 74: Szenario Gamma 19-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die Mehrlinienstrahler Eu-152 und Eu-154 in Multipletts, mit Nulleffektkorrektur.

Eu-152/154 PG2	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - PG2 - Eu-152	8200	5,02	12,71	25,61	8200	5,02	7393	9008
EB - PG2 - Eu-154	606,3	5,28	12,48	25,18	606,3	5,28	543,5	669,1
UR - PG2 - Eu-152	8200	5,02	12,70	25,61	8200	5,02	7393	9008
UR - PG2 - Eu-154	606,3	5,28	12,48	25,17	606,3	5,28	543,5	669,1
PG2 - Eu-152	8268	5,02	13,91	28,04	8268	5,02	7453	9083
PG2 - Eu-154	606,3	5,24	11,54	23,28	606,3	5,32	543,0	669,7
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - PG2 - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - PG2 - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - PG2 - Eu-152	0,00	0,00	-0,03	-0,01	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - PG2 - Eu-154	0,00	0,00	-0,01	-0,01	0,00	0,00	0,00	0,00
PG2 - Eu-152	0,82	-0,01	9,46	9,49	0,82	0,01	0,80	0,83
PG2 - Eu-154	0,00	-0,85	-7,56	-7,53	0,00	0,74	-0,10	0,08

4.5.23 Szenario 20: Mehrlinienstrahler, mit Aktivität, im Multiplett, mit Nulleffekt, mit Zerfallskorrektur

Tabelle 75: Szenario Gamma 20-1: Vergleich von PG1 mit EB und UR für die Mehrlinienstrahler Eu-152 und Eu-154 in Multipletts, mit Nulleffekt- und Zerfallskorrektur. Das Bezugsdatum liegt ca. 8 a

vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 =13,522, Eu-154 = 8,601 a).

Eu-152/154 - PG1	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - PG1 - Eu-152	12967	25,17	15,44	37,50	12967	25,17	6571	19364
EB - PG1 - Eu-154	1092	25,18	6,473	15,74	1092	25,18	553,1	1631
UR - PG1 - Eu-152	12967	25,17	15,44	37,51	12967	25,17	6570	19364
UR - PG1 - Eu-154	1092	25,18	6,442	15,66	1092	25,18	553,1	1631
PG1 - Eu-152	13000	25,17	15,40	37,50	13000	25,16	6600	19400
PG1 - Eu-154	1090	25,18	6,470	15,70	1090	25,17	554,0	1630
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - PG1 - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - PG1 - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - PG1 - Eu-152	0,00	0,00	-0,03	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - PG1 - Eu-154	0,00	0,00	-0,48	-0,51	0,00	0,00	0,00	0,00
PG1 - Eu-152	0,25	0,01	-0,29	0,01	0,25	-0,03	0,45	0,19
PG1 - Eu-154	-0,20	-0,01	-0,05	-0,25	-0,20	-0,05	0,16	-0,08

In Erweiterung des Szenarios 19 werden zusätzlich eine Zerfallskorrektur und zusätzliche Messunsicherheiten in Höhe von 25 % betrachtet. Für PG1 ergeben sich keine Abweichungen bzgl. EB und UR. Aufgrund der Tatsache, dass die zusätzliche Messunsicherheit erst in das Endergebnis - die Nuklidaktivität bzw. -unsicherheit – eingerechnet wird, wird diese zusätzliche Unsicherheit durch das Mittelungsverfahren nicht reduziert. Für PG2 liegen die gleichen Abweichungen für EKG und NWG wie schon für Szenario 19 vor. PG2 berücksichtigt keine Unsicherheit der Halbwertszeit, die in diesem Szenario aber eine untergeordnete Rolle spielt.

Tabelle 76: Szenario Gamma 20-2: Vergleich von PG2 mit EB und UR für die Mehrlinienstrahler Eu-152 und Eu-154 in Multipletts, mit Nulleffekt- und Zerfallskorrektur. Das Bezugsdatum liegt ca. 8 a vor dem Messdatum (Halbwertszeit Eu-152 =13,522, Eu-154 = 8,601 a).

Eu-152/154 - PG2	A (Bq)	u(A) (%)	EKG (Bq)	NWG (Bq)	BS (Bq)	u(BS) (%)	UG (Bq)	OG (Bq)
EB - PG2 - Eu-152	12462	25,50	19,15	46,51	12462	25,50	6234	18691
EB - PG2 - Eu-154	1156	25,55	23,80	57,82	1156	25,54	577,2	1735
UR - PG2 - Eu-152	12462	25,50	19,15	46,52	12462	25,50	6234	18691
UR - PG2 - Eu-154	1156	25,55	23,79	57,84	1156	25,55	576,9	1735
PG2 - Eu-152	12462	25,50	20,97	50,96	12463	25,49	6228	18700
PG2 - Eu-154	1156	25,54	22,00	53,51	1156	25,55	576,2	1736
Abweichung (%)	A	u(A)	EKG	NWG	BS	u(BS)	UG	OG
EB - PG2 - Eu-152	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
EB - PG2 - Eu-154	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - PG2 - Eu-152	0,00	0,00	-0,02	0,03	0,00	0,00	0,00	0,00
UR - PG2 - Eu-154	0,00	0,00	-0,02	0,03	-0,01	0,04	-0,04	0,00
PG2 - Eu-152	0,00	0,00	9,48	9,57	0,00	-0,04	-0,10	0,05
PG2 - Eu-154	0,00	-0,05	-7,55	-7,45	0,00	0,03	-0,17	0,06

4.5.24 Zusammenfassung zu den untersuchten Programmen in der Gammaskpektrometrie

PG1 produziert generell verlässlich Ergebnisse und berechnet EKG und NWG auf nachvollziehbare, DIN EN ISO 11929:2021-konforme Weise. Es wurde ein Fall festgestellt – Szenario 6 – in dem die Messunsicherheit einer Einzellinie aus unbekanntem Gründen unterschätzt wurde. Ein generelles Problem tritt in der überprüften Version von PG1 bei der Betrachtung von Mehrlinienstrahlern und der Effizienzkalibrierung mit korrelierten Unsicherheiten zwischen den Kalibrierpunkten auf. Sowohl in der Effizienzkalibration als auch in der Auswertung werden Korrelationen zwischen den Gammalinien nicht beachtet. Das führt dazu, dass zum einen die Unsicherheiten der Nachweiseffizienzfunktionen (außer bei der punktwisen Interpolation) deutlich unterbewertet werden und bei Verwendung vieler Linien auch kleiner sein können als die Unsicherheit des verwendeten Kalibrierstandards. Zum anderen wird die Nuklidunsicherheit bei Mehrlinienstrahlern durch das angewendete Berechnungsverfahren ebenso unterschätzt – insbesondere kann so auch eine Messunsicherheit erzeugt werden, die geringer ist als die Unsicherheit des verwendeten Kalibrierstandards. Innerhalb der Bearbeitungszeit dieses Projekts wurde allerdings eine neuere Version von PG1 veröffentlicht, die es ermöglicht, Korrelationen explizit zu berücksichtigen. Dies wurde für die Mittelwertbildung exemplarisch in Szenario 19 überprüft und liefert dort plausible Werte für die Messunsicherheit der Nuklidaktivität. Darüber hinaus wurde in Szenario 6 festgestellt, dass PG1 bei der Berechnung der EKG und NWG im Multipllett je nachdem ob ein Nettomesseffekt vorhanden ist, oder der Peak ausschließlich dem Nulleffekt entspricht, stark unterschiedliche Werte berechnet. Der Unterschied resultiert dabei nicht ausschließlich aus dem Nulleffektabzug, sondern auch aus einer Änderung des Berechnungsverfahrens.

Ein weiteres aufgetretenes Problem ist, dass es PG1 zwar ermöglicht, bestimmte Linien eines Nuklids aus der Berechnung der gemittelten Aktivität auszuschließen – was sinnvoll sein kann, wenn z. B. eine Störung vermutet wird – diese Selektion jedoch bei der Angabe von EKG und NWG keine Anwendung findet. Da PG1 die nuklidspezifischen Grenzen immer auf die kleinsten Linien-Grenzen bezieht, können u. U. auch die Grenzen der ausgeschlossenen Linie als Endergebnis ausgegeben werden.

Bei PG2 treten kleinere Ungenauigkeiten auf, indem zunächst für jedes Nuklid nur eine Unsicherheit für Emissionswahrscheinlichkeiten berücksichtigt wird, die dann für alle Linien angewendet wird. Weiterhin gibt es den formalen Fehler, dass keine Unsicherheiten der Halbwertszeiten der Nuklide einbezogen werden — jedoch spielen diese bei praxisrelevanten Nukliden meist eine vernachlässigbare Rolle. Die Messergebnisse und Unsicherheiten wurden immer korrekt berechnet und durch die verwendete Mittelungsmethode bei Mehrlinienstrahlern wird hier eine Unterbewertung der Gesamtunsicherheit vermieden. Die Wahl der Emissionswahrscheinlichkeit als einzigen Wichtungsfaktor erscheint dabei jedoch etwas willkürlich, da diese zwar mit der Messunsicherheit korreliert, aber der Einfluss anderer linien- oder energieabhängiger Faktoren, wie z. B. der Nachweiswahrscheinlichkeit, vernachlässigt wird. Allerdings kommt es bei allen Szenarien mit Nulleffektabzug und Peakentfaltung zu Abweichungen in den EKG und NWG. Die hier auftretenden Unterschiede konnten anhand des Handbuchs und der Ausgaben des Programms nicht nachvollzogen werden. Bei den meisten, jedoch nicht bei allen, Abweichungen kam es zu einer Überschätzung von EKG und NWG.

4.5.25 Prüfung von Manuals weiterer Software

Da für die Gammaskpektrometrie nur zwei Softwarepakete für die weitere Untersuchung im Rahmen dieses Vorhabens in Frage kamen und diese Zahl geringer ist als die zunächst angedachte Anzahl von drei Softwarepaketen, wurden mit dem Auftraggeber gemäß Leistungsbeschreibung alternative Leistungen vereinbart. In diesem Zusammenhang sollte die Prüfung von Manuals weiterer Softwareprodukte für die Gammaskpektrometrie hinsichtlich der Auswertung nach DIN EN ISO 11929 erfolgen. Neben den hier untersuchten Gammaskpektrometrie-Softwarepaketen hat das Programm InterWinner, welches schon für den Bereich der Alphaspektrometrie untersucht wurde, in der Gammaskpektrometrie eine sehr große Verbreitung.

Aktuell wird die Version 8 vom 01. Februar 2017 vertrieben. Das Manual [9] enthält sowohl die Beschreibung der Software allgemein sowie der speziell angepassten Auswertemodule für die Gammaskpektrometrie mit Germanium-Halbleiterdetektoren (InterWinner/GE), mit NaI-Detektoren (InterWinner/NaI) und auch für die Alphaspektrometrie (InterWinner/Alpha).

Im Folgenden wird auf das Auswertemodul InterWinner/GE näher eingegangen. Wie die anderen untersuchten Programme wird auch bei diesem Softwarepaket in einem ersten Auswerteschritt eine Energie- und eine Peakformkalibrierung durchgeführt. Anschließend erfolgt eine Effizienzkalibration unter Zuhilfenahme des Zertifikats des Kalibrierstandards. Die Funktion wird in der Regel als Polynom n-ten Grades an die Messdaten angefitet. Der Benutzer hat die Möglichkeit, auch andere Fitverfahren auszuwählen (doppelt logarithmische Polynome, Wurzelfunktionen, lineare Interpolation und Spline Interpolation). Es ist möglich, alle Kalibrierungen manuell zu editieren.

In der Folge werden eine Nuklidtabelle und eine Nulldatei, welche Angaben zum Detektoruntergrund enthält, definiert. Es kann zudem eine energieabhängige Transmissionskurve definiert werden (z. B. zur Korrektur von Abschwächungen zwischen Probe und Detektor oder auch innerhalb der Probe). Die üblichen Auswerteparameter (Peaksuchempfindlichkeit etc.) und Korrekturen wie Zerfalls- und Summationskorrekturen, sowie probenspezifische energieunabhängige Faktoren wie z. B. chemische Ausbeuten können eingegeben werden. Zusätzliche (Typ-B)-Unsicherheiten werden global direkt in der Initialisierungsdatei InterWinner.ini eingetragen. Selbstabsorptionseffekte in der Probe werden durch Eingabe von Absorptionsparametern berücksichtigt.

Die Peakflächenberechnung erfolgt ggf. nach Peakentfaltung. Die Peakzuordnung und Auswertung berücksichtigen auch spektrale Interferenzen. Die Aktivitätsbestimmung erfolgt mit Hilfe der hinterlegten Auswerteparameter. Die charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 werden berechnet. Neben der Aktivität werden Erkennungs- und Nachweisgrenzen angezeigt, zusätzlich kann man sich den Besten Schätzwert sowie den Vertrauensbereich (neue Nomenklatur Überdeckungsintervall) ausgeben lassen.

Der Formalismus der Berechnung des besten Schätzers wird in Kapitel 12.6.6 und der des Vertrauensbereichs in Kapitel 12.6.7 des Manuals dargelegt. Die Formeln entsprechen dabei den Vorgaben der DIN EN ISO 11929.

Im Kapitel 12.7.2 wird die Berechnung von Erkennungs- und Nachweisgrenze nach DIN EN ISO 11929 für Linien ohne und mit Interferenz beschrieben.

Der Spektrenuntergrund (nach Abzug der Peak Nettoflächen) wird an der Stelle, wo der Peak erwartet wird, über das 2,5-fache (Wert kann festgelegt werden) der erwarteten Auflösung in Kanälen gemittelt. Das Ergebnis wird dann mit dem 2,5-fachen (Wert kann ebenfalls festgelegt werden) der erwarteten Auflösung multipliziert.

Die verwendeten Formeln entsprechen dabei denen der DIN EN ISO 11929.

In der Datei MDA.ini können o.g. Parameter zur Spektrenuntergrundbehandlung und die Parameter wie $k(1-\alpha)$ und $k(1-\beta)$ festgelegt werden.

4.6 Vergleich der im Rahmen der Berechnung ermittelten Nachweisgrenzen mit den Anforderungen aus der RiPhyko Teil 2

Die Werte der Nachweisgrenzen, die unter realistischen Annahmen aus den repräsentativen Messszenarien berechnet wurden, waren mit den praktischen Nachweisgrenzen, die in Anhang 3.1 der Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosen Teil 2 [24] für die gewählten Radionuklide tabelliert sind, zu vergleichen. Hierzu wurde vereinfachend für alle Parameter die in-vitro Analyse des Urins mit einer Standardausscheidungsrate von 1,4 Liter pro Tag angenommen. Wenn die analytischen Randbedingungen sinnvoll gewählt werden, ist die Einhaltung der Werte im Rahmen der untersuchten Szenarien möglich (siehe Tabelle 77).

Tabelle 77: Vergleich der Nachweisgrenzen aus den repräsentativen Messszenarien mit den praktischen Nachweisgrenzen aus Anhang 3.1 der Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosen Teil 2

Radionuklid	Absorptions-klasse bzw. chemische Form [22]	Matrix/Methode	Praktische NWG [22]	Berechnete NWG	Bemerkungen
H-3	HTO	Urin/LSC	100 Bq/l	5,3 Bq/l	Probenmenge 1 ml, siehe Tabelle 32
C-14	Dioxid	Urin/LSC	40 Bq/d	31,5 Bq/d (22,5 Bq/l)	Probenmenge 1 ml, siehe Tabelle 39
Co-60	S	Urin/Gamma	1 Bq/d	0,256 Bq/d (0,183 Bq/l)	Probenmenge 1 l, siehe Tabelle 45
Cs-137	S	Urin/Gamma	1 Bq/d	0,19 Bq/d (0,136 Bq/l)	Probenmenge 1 l, siehe Tabelle 46
Po-210	F	Urin/Alpha	0,001 Bq/d	0,00076 Bq/d	Probenmenge = Tagesurin, siehe Tabelle 16
Ra-224	M	Urin/Alpha	0,001 Bq/d	0,00021 Bq/d	Probenmenge = Tagesurin, siehe Tabelle 29

Th-232/230/228	M	Urin/Alpha	0,001 Bq/d	0,00090 Bq/d (Th- 228)	Probenmenge = Tagesurin, siehe Tabelle 27
U-238/235/234	M	Urin/Alpha	0,001 Bq/d	0,00023 Bq/d (U- 238)	Probenmenge = Tagesurin, siehe Tabelle 5
Pu-240/238/238	M	Urin/Alpha	0,001 Bq/d	0,00020 Bq/d (Pu- 238)	Probenmenge = Tagesurin, siehe Tabelle 20

5 Zusammenfassung

Ziel des Vorhabens war die Überprüfung der Berechnung der charakteristischen Grenzen in Computer-Software, die für die Auswertung von Inkorporationsmessungen mit den Messmethoden Alphaspektrometrie, LSC und Gammaskpektrometrie in Deutschland am meisten verwendet wird. Dafür sollten verschiedene Messszenarien mit realen oder simulierten Spektren entwickelt werden, in die die einzelnen Beiträge zur Unsicherheit in verschiedenem Maße eingehen. Die Ergebnisse der von der Software ausgegebenen Werte sollten mit selbst berechneten Werten verglichen und die Güte der Übereinstimmung bewertet werden. Ein Vergleich mit den Ergebnissen der Software UncertRadio sollte ebenfalls erfolgen. Auf diese Weise sollte nachgewiesen werden, ob sich Anwender*innen dieser Computer-Software sowie der Software UncertRadio auf die berechneten Werte der charakteristischen Grenzen verlassen können. Die Ergebnisse sollen möglichst auch zur deutschlandweit einheitlichen Berechnung von Messergebnissen von Personen- und Ringversuchsmessungen in der Inkorporationsüberwachung beitragen, wie sie in einer neuen Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosen Teil 2 unter Berücksichtigung der DIN EN ISO 11929 vorgesehen sein könnte.

Das Vorhaben war in drei Arbeitspakete (AP) gegliedert:

AP 1: Marktrecherche bezüglich der Verbreitung der Software-Pakete in Deutschland

AP 2: Entwicklung der zu untersuchenden Messszenarien

AP 3. Überprüfung der Berechnung

Auf der Grundlage einer fragebogenbasierten und telefonisch durchgeführten Recherche unter den Inkorporationsmessstellen wurde in AP 1 eine Übersicht der in den Inkorporationsmessstellen in Deutschland eingesetzten Software-Pakete zur Spektrenauswertung für Alpha- und Gammaskpektrometrie sowie LSC erstellt. Es wurde eine sehr hohe Rücklaufquote von etwa 86% der kontaktierten Messstellen erreicht, so dass das Ergebnis als repräsentativ betrachtet werden kann. Die Befragung lieferte zudem wichtige Informationen zu den vorhandene Messsystemen und den realen Messaufgaben der Messstellen.

Die am häufigsten eingesetzten kommerziellen Softwarepakete wurden identifiziert. Es stellte sich heraus, dass maximal zwei unterschiedliche Produkte je Methode in der Praxis Verwendung finden und damit für die eingehendere Untersuchung im Rahmen des Projekts relevant sind. Im Einzelnen sind dies:

Alphaspektrometrie:

- Genie 2000 Alpha bzw. Apex Alpha (Mirion Technologies)
- InterWinner (Technisches Ingenieurbüro Krüger)

LSC:

- MikroWin (Hidex)
- Excel Makro zur QuantaSmart Software (Perkin Elmer)

Gammaskpektrometrie:

- Genie 2000 bzw. Apex in-vivo/Apex (Mirion Technologies)
- GammaVision (AMETEK ORTEC)

Anhand der Benutzerdokumentationen der jeweiligen Software-Pakete wurden die Art und die Tiefe der Umsetzung der Berechnung der charakteristischen Grenzen in dem jeweiligen Softwarepaket untersucht.

Es wurde festgestellt, dass es zwar interne Dokumente zur Konformität der Berechnungen mit DIN EN ISO 11929 gibt, jedoch keine öffentlich zugänglichen externen Validierungsdokumente.

In AP 2 wurden die in der Leistungsbeschreibung genannten Kriterien zur Entwicklung von Messszenarien erweitert und konkretisiert. Dabei wurden die realen Messaufgaben der Messstellen, eigene praktische Erfahrungen des Auftragnehmers sowie die einschlägige Literatur berücksichtigt. Auf diese Weise konnten je Methode 20 verschiedene Messszenarien für die weitere Untersuchung im AP 3 entworfen werden.

In AP 3 wurden die Messszenarien in die jeweiligen zu untersuchenden Software-Pakete eingespielt und mit geeigneten Routinen ausgewertet. Die charakteristischen Grenzen wurden außerdem mit Hilfe einer selbst entwickelten Berechnung (auf der Basis einer Tabellenkalkulation) überprüft sowie mit der aktuellen Version der Software UncertRadio berechnet.

Zu den Szenarien lagen dem Auftraggeber in der Regel reale Spektren vor. Diese stammten entweder aus eigenen Messungen oder wurden von kooperierenden Messstellen zur Verfügung gestellt. Zur Erfassung von komplexeren Szenarien war in Einzelfällen der Einsatz simulierter Spektren erforderlich, die sich durch die Modifikation von realen Spektren gewinnen ließen.

Bei der praktischen Umsetzung zeigte sich, dass nicht alle angedachten Szenarien mit Hilfe der Softwarepakete wie geplant abgebildet werden konnten. Dies traf insbesondere auf die LSC zu, wo die Berechnung nach DIN EN ISO 11929 generell weniger stark in den Softwarepaketen implementiert ist. Insgesamt kann man jedoch sagen, dass die überwiegende Zahl der praktischen Anwendungsfälle durch die geringere Zahl an Szenarien abgedeckt war. In den Fällen, wo nur wenige der angedachten Szenarien umgesetzt werden konnten, wurden in AP3 weitere Unterszenarien entwickelt und untersucht.

Für die Berechnungen wurde durch den Auftragnehmer das gemäß DIN EN ISO 11929 geeignete Rechenverfahren ausgewählt und zunächst vorgestellt. Anschließend erfolgten die Darstellung der Ergebnisse und ihre Bewertung. Als maßgeblich wurde hierbei die Anforderung aus der Leistungsbeschreibung herangezogen:

Stimmen die Erkennungs- und Nachweisgrenzen sowie die Breite des Vertrauensbereichs um

bis zu 5 Prozent überein, kann das Ergebnis als validiert angesehen werden.

Die wichtigsten Ergebnisse werden im Folgenden methodenweise zusammengefasst:

Alphaspektrometrie:

Die Softwarepakete PA1 und PA2 sind jeweils geeignet, alphaspektrometrische Messungen auszuwerten. PA1 und PA2 bieten zahlreiche Möglichkeiten an, alle notwendigen Auswerteparameter einzustellen. Es konnten alle Verfahren mit der Berechnung über einen Tracer oder die Kammereffizienz dargestellt werden. Auch der Abzug von Blindwerten oder die Berücksichtigung von Kontaminationen des Tracers waren unproblematisch. Lediglich der Fit von Alphaspektren mit deutlichem Low-Tail konnte nur von PA1 umgesetzt werden. Auf die Umsetzung von Verfahren mit Probenteilung wurde verzichtet, da die Programmpakete ohnehin mit Kontaminationen im Tracer umgehen können, und dies damit überflüssig erschien.

Folgende Aspekte sind bei den Untersuchungen aufgefallen:

Problematisch erscheint der Umgang mit 0 Impulsen im Spektrum der Probe und/oder dem Untergrund. Insbesondere UncertRadio liefert hier ein unplausibles Ergebnis ab, wenn sowohl in der Probenmessung als auch im Untergrund keine Impulse verzeichnet werden. Normalerweise würde man hier als primäres Messergebnis 0 erwarten. Im untersuchten Szenario kommt allerdings ein Wert größer der Erkennungsgrenze heraus. Die Norm geht zwar auf den Fall ein, wie mit 0 Impulsen umzugehen ist, die genaue Vorgehensweise bleibt aber schwammig. Entsprechend der Norm soll im Falle „ $n=0$ “ die Zählrate auf $1/t$ und die Unsicherheit der Zählrate auf $1/t^2$ gesetzt werden. Ob diese manipulierten Messdaten auch für die Berechnung des primären Messergebnisses verwendet werden sollen, wird in der Norm nicht beschrieben. Bei den untersuchten Softwareprodukten PA1 und PA2 wird das negiert und man erhält für das primäre Messergebnis sinnvolle Ergebnisse. Bei den eigenen Berechnungen haben wir uns ebenfalls für dieses Vorgehen entschieden. PA2 gibt bei Szenarien mit 0 Impulsen im Untergrund niedrigere Werte für die EKG aus, was als Abweichung festzustellen ist. Bei den eigenen Berechnungen sind wir davon ausgegangen, dass man durch die oben ausgeführten Ersetzungen auf die gleichen Ergebnisse kommen müsste, wie wenn 1 Impuls im Spektrum gewesen wäre.

Auffällig war außerdem, wie die Programme mit der Berechnung von BS, $u(BS)$, UG und OG umgehen, sofern die Entscheidungsregel für das Vorliegen des physikalischen Effekts nicht positiv ist ($A < A^*$). In der Norm sind die Berechnungen von UG und OG jeweils an die Bedingung geknüpft, dass das primäre Messergebnis größer der Erkennungsgrenze ($A > A^*$) ist. Also gibt es für diese Größen keine mit der Norm konforme Berechnungsgrundlage. Wenn man den besten Schätzer als finales Messergebnis nach Anwendung der Norm versteht, dann sollte dieser Zahlenwert nicht angegeben werden.

Wie bereits erwähnt, ist nur PA1 in der Lage, Alphaspektren sinnvoll zu fitten. Problematisch wird dann aber der Umgang mit der Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen. Dabei ist unklar, wie gut die Fitparameter den Low-Tail des Alphaspektrums darstellen – insbesondere dann, wenn das ganze Spektrum nur wenige hundert Impulse aufweist.

Bei den Untersuchungen zu Messungen mit kontaminiertem Tracer ist aufgefallen, dass die Softwarepakete hier unterschiedliche Ergebnisse für EKG und NWG liefern. Das liegt daran, dass beide Softwarepakete auf unterschiedlichen Modellen der Auswertung beruhen. Während bei PA1 ein Blindwert als Aktivität mit einer Unsicherheit eingegeben wird, nutzt PA2 ein

Spektrum des Blindwertes und zieht dann eine Zählrate von der Bruttozählrate ab. Vorteil des Vorgehens von PA1 ist, dass Blindwerte über einen längeren Zeitraum gemittelt werden können und man über die Standardabweichung einen realistischeren Wert für die Unsicherheit des Blindwerts erhalten kann, als wenn man nur ein Blindwertspektrum heranzieht und annimmt, dass die Unsicherheiten ausschließlich auf der Zählstatistik beruhen würden. Demgegenüber hat das Vorgehen von PA2 den Vorteil, dass man nur ein weiteres Spektrum einlesen muss, ohne dies komplett auswerten zu müssen.

Die richtige Umsetzung der Abklingkorrektur wurde an einem Beispiel für Ra-224 gezeigt. Einschränkend muss man erwähnen, dass PA1 die Unsicherheiten der Halbwertszeiten nicht berücksichtigt. Dies ist der Tatsache geschuldet, dass kaum ein sinnvolles Szenario existiert, bei dem die Unsicherheit der Abklingkorrektur eine wesentliche Rolle spielt.

Abschließend kann festgestellt werden, dass man in den untersuchten Szenarien mit beiden Softwarepaketen sinnvolle Ergebnisse erhält und die Programme für einen Einsatz in der Routine geeignet erscheinen.

Die beiden Programme berechnen die charakteristischen Grenzen im Wesentlichen konform zu DIN EN ISO 11929. Bei dem Sonderfall von 0 Impulsen im Untergrund (U-235 im Szenario A01) sind die Abweichungen bei der EKG-Berechnung bei PA2 größer 5%. Beim Nuklid Pu-239/240 in den Szenarien A13 und A14 ist ebenfalls eine Abweichung größer 5% bei der EKG-Berechnung festzustellen.

Die Ergebnisse von UncertRadio konnten mit Ausnahme der Fälle mit 0 Impulsen in Probe oder Untergrund in vollem Umfang nachvollzogen werden und stimmen bei korrekter Eingabe der Parameter mit den eigenen Berechnungen nach DIN EN ISO 11929 überein.

LSC:

Schon nach der Bearbeitung der Arbeitspakete 1 und 2 war festzustellen, dass bei den meisten Software- und Hardwareherstellern der Berechnung der charakteristischen Grenzen nach DIN EN ISO 11929 durch die Software des Herstellers keine große Rolle eingeräumt wurde. Lediglich ein Hersteller bietet die Berechnung der Ergebnisse durch die mitgelieferte Software an (PB1). Ein weiterer Hersteller liefert ein optionales Excel-Makro (PB2), das hier ebenfalls untersucht wurde.

Durch die direkte Implementierung der Berechnung in die Herstellersoftware bei PB1 ist gewährleistet, dass man die Berechnungen und Ausgaben an die Anforderung der Messaufgabe anpassen kann. Durch die mitgelieferten Parameterfiles hat man dafür einen guten Ausgangspunkt. Außerdem gibt es sehr viele Möglichkeiten, zusätzliche Unsicherheiten zu implementieren. Bei dem Nuklid C-14 konnte festgestellt werden, dass die Berechnungen sehr zuverlässig ausgeführt werden. Bei den Nukliden H-3 und Sr-90/Y-90 hingegen stellt sich ein Problem mit dem Umgang mit der Abklingkorrektur heraus. PB1 führt die Abklingkorrektur nur bei der Berechnung des primären Messergebnisses aus. Dadurch ergibt sich das Problem, dass man die Ausgaben der Software schlecht in einen Prüfbericht übertragen kann, da es einem Kunden nur schwer zuzumuten ist, wenn sich die Ergebnisse auf unterschiedliche Bezugsdaten beziehen. Wir empfehlen den Nutzern der Software dieses Problem zu lösen, indem die Abklingkorrektur ausschließlich auf den erweiterten Kalibrierfaktor angewendet wird.

Nach Bearbeitung des Projektes konnten wir die in den Rechenmatrizen der Software hinter-

legten Formeln und die Definitionen analysieren. Dabei hat sich zum Einen bestätigt, dass die Abklingkorrektur nur auf das Messergebnis angewendet wird, und zum Anderen, dass die im Handbuch angegebene Formel zur Berechnung der relativen Unsicherheit des TDCR von der Formel in der Definitionsdatei abweicht.

Das Programm PB1 berechnet die charakteristischen Grenzen im Wesentlichen konform zu DIN EN ISO 11929. Lediglich bei den Szenarien mit fehlerhafter Abklingkorrektur traten Abweichungen größer 5% bei der Berechnung der NWG auf.

PB2 lässt sich nach der Installation direkt aus dem Messprogramm starten. Dabei haben wir den Eindruck gewonnen, dass ausschließlich Verfahren umgesetzt werden können, die eine Quenchkurve für die Bestimmung eines einzelnen Nuklids einsetzen. Eine Ausbeutekorrektur scheint sich auch nur auf eine Messserie anwenden zu lassen. Muss man beispielsweise sechs bis zehn Sr-90 oder P-32-Proben messen, bei denen wahrscheinlich jede eine andere Ausbeute aufweist, wird es schwierig dies hier umzusetzen. Ebenfalls ist eine Zerfallskorrektur nicht implementiert. Wir haben daher mit der Software nur zwei Szenarien für die Bestimmung von Tritium nach Destillation umgesetzt. Auf weitere Szenarien wie die Bestimmung von C-14 musste verzichtet werden, da die Messstelle das Programm nicht in der Routine verwendet. Für die untersuchten Szenarien kann festgestellt werden, dass die Berechnung der charakteristischen Grenzen mit den eigenen Berechnungen übereinstimmen.

UncertRadio liefert ebenfalls DIN EN ISO 11929 konforme Ergebnisse.

Gammaspktrometrie:

Bei allen untersuchten Programmen konnte weitestgehend eine mit der DIN EN ISO 11929 konforme Arbeitsweise festgestellt werden. Für die korrekte Nutzung ist jedoch in beiden Fällen eine intensive Auseinandersetzung mit den Programmen erforderlich, da die nötigen Einstellungen nicht ohne Weiteres klar erkennbar und dem Nutzer teils oberflächlich verborgen sind. Auch konnten Probleme aufgezeigt werden, die nicht die DIN EN ISO 11929 betreffen.

Für PG1 werden die Ergebnisse und die EKG und NWG korrekt berechnet. Es wurde ein Fall festgestellt – Szenario 6 – in dem die Messunsicherheit einer Einzellinie aus unbekanntem Gründen unterschätzt wurde. Probleme treten bei PG1 bei der Kalibrierung mit korrelierten Unsicherheiten auf und bei der Betrachtung von Mehrlinienstrahlern. Sowohl in der Effizienzkalibration als auch in der Auswertung werden Korrelationen zwischen den Gammalinien nicht beachtet. Dadurch werden die Unsicherheiten der Nachweeffizienzfunktionen ebenso unterschätzt, wie die Nuklidunsicherheit bei Mehrlinienstrahlern. Insbesondere kann so eine Mess- oder Kalibrierunsicherheit erzeugt werden, die geringer ist als die Unsicherheit des verwendeten Kalibrierstandards. Innerhalb der Bearbeitungszeit dieses Projekts wurde allerdings eine neuere Version von PG1 veröffentlicht, die es ermöglicht, Korrelationen explizit zu berücksichtigen. Dies wurde für die Mittelwertbildung exemplarisch überprüft und liefert plausible Werte für die Messunsicherheit der Nuklidaktivität. Ein weiteres aufgetretenes Problem ist, dass es PG1 zwar ermöglicht, bestimmte Linien eines Nuklids aus der Berechnung der gemittelten Aktivität auszuschließen, diese Selektion jedoch bei der Angabe von EKG und

NWG keine Anwendung findet. Da PG1 die nuklidspezifischen Grenzen immer auf die kleinsten Linien-Grenzen bezieht, können u.U. auch die Grenzen der ausgeschlossenen Linie als Endergebnis ausgegeben werden.

Bei PG2 ergeben sich kleine Abweichungen, da für jedes Nuklid nur eine Unsicherheit für Emissionswahrscheinlichkeiten berücksichtigt wird, die dann für alle Linien Verwendung findet. Außerdem können keine Unsicherheiten der Halbwertszeiten der Nuklide einbezogen werden. Die Messergebnisse und Unsicherheiten wurden immer korrekt berechnet und durch die verwendete Mittelungsmethode bei Mehrlinienstrahlern wird hier eine Unterbewertung der Gesamtunsicherheit vermieden. Allerdings kommt es bei allen Szenarien mit Nulleffektabzug und Peakentfaltung zu Abweichungen in den EKG und NWG. Die hier auftretenden Unterschiede konnten anhand des Handbuchs und der Ausgaben des Programms nicht nachvollzogen werden. Bei den meisten, jedoch nicht bei allen, Abweichungen kam es dabei zu einer Überschätzung von EKG und NWG.

Beide Programme arbeiten im Wesentlichen DIN EN ISO 11929 konform. Bei PG1 können die Probleme mit einem Update behoben werden, bei PG2 kommt es aus ungeklärter Ursache bei UG-Abzug und Entfaltungen zu abweichenden EKG und NWG. Die Ergebnisse von UncertRadio konnten in vollem Umfang nachvollzogen werden und stimmen bei korrekter Eingabe der Parameter mit den eigenen Berechnungen nach DIN EN ISO 11929 überein.

Allgemein:

In AP3 wurde zudem je eine weitere alpha- und gammaspektrometrische Auswertesoftware durch Begutachtung des jeweiligen Manuals auf die Möglichkeit der Auswertung gemäß DIN EN ISO 11929 geprüft. Dabei zeigte sich, dass die Alphaspektrometrie-Software (AlphaVision 7) mit dem derzeitigen Versionsstand dazu nicht in der Lage war, die Gammaspektrometrie-Software (InterWinner 8) allerdings schon.

Abschließend wurden die im Rahmen der Berechnung erzielten NWG noch mit den Anforderungen der Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosen Teil 2 verglichen. Wenn die analytischen Randbedingungen sinnvoll gewählt werden, ist die Einhaltung der Werte im Rahmen der untersuchten Szenarien möglich.

6 Literaturverzeichnis

- [1] Leistungsbeschreibung „Überprüfung der Berechnung charakteristischer Grenzen nach DIN EN ISO 11929 in verbreiteter Spektrometrie-Software“ (FKZ 3622S12216), 18.01.2022
- [2] I. Fesenbeck, C. Wilhelm, A. Zieger: Loseblattsammlung FS-78-15-AKU „Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität“ - Beispiele zur Berech-

- nung von Erkennungs- und Nachweisgrenze gemäß DIN ISO 11929. April 2013
- [3] Joint Committee for Guides in Metrology (JCGM/WG 1): Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement. JCGM 100:2008, GUM 1995 with minor corrections. September 2008
 - [4] G. Kanisch: UncertRadio, Version 2.4.22, in: <https://www.thuenen.de/en/institutes/fisheries-ecology/fields-of-activity/marine-environment/coordination-centre-of-radioactivity/uncertradio/>, letzter Zugriff 28.04.2023.
 - [5] G. Kanisch: Generalized evaluation of environmental radioactivity measurements with UncertRadio. Part I: Methods without linear unfolding, Appl. Radiat. Isot. 110 (2016) 28 - 41
 - [6] G. Kanisch: Generalized evaluation of environmental radioactivity measurements with UncertRadio. Part II: Methods with linear unfolding, Appl. Radiat. Isot. 110 (2016) 74 - 86
 - [7] Canberra Industries: Model S509 Alpha Analysis Option User's Manual – 9230875M
 - [8] Canberra Industries: Genie 2000 ISO 11929 MDA Engine - Bericht zur Qualifizierung, Revision 1.0D, 15. Juni 2012
 - [9] Technisches Ingenieurbüro Krüger: InterWinner Handbuch für Version 8, 01.02.2017
 - [10] Hidex Deutschland: Benutzer-Handbuch Hidex 300 SL, Version 3.11, 04.04.2022
 - [11] Broda, R., Pochwalski, K., Radoszewski, T., 1988, Calculation of liquid-scintillation detector efficiency. Appl. Radiat. Isot. 39(2), 159-164
 - [12] Perkin Elmer: Bedienungsanleitung zum Excel Makro für die Reporterstellung nach DIN ISO 11929, Version 1.16, 2015
 - [13] Canberra Industries: Genie 2000 Operations Manual – 9233652J, V3.4.
 - [14] ORTEC: GammaVision Software User's Manual, Version 7, 2014
 - [15] DIN ISO 11929-4:2021-06: Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen - Teil 4: Anwendungsleitfaden (ISO 11929-4:2020)
 - [16] L. Peters, Charakteristische Grenzen nach DIN EN ISO 11929. Diplomarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2012.
 - [17] Kerntechnischer Ausschuss (KTA): Sachstandsbericht, Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Kernstrahlungsmessungen nach DIN ISO 11929 (2011-01), Anwendungsbeispiele für die KTA-Regeln der Reihe 1500, KTA-GS-82 (Rev. 1), November 2016
 - [18] G. Kanisch, M.-O. Aust, F. Bruchertseifer, A. Dalheimer, A. Heckel, S. Hofmann, C. Kowalik, F. Ober, K. Rupprecht, U.-K. Schkade, H. Wershofen: Messanleitungen für die „Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“: Bestimmung der charakteristischen Grenzen bei der Aktivitätsbestimmung radioaktiver Stoffe, Teil 1: Grundlagen, CHAGR-ISO-01, Version vom Mai 2022
-

- [19] DIN ISO 11929-1:2021-06: Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen - Teil 1: Elementare Anwendungen (ISO 11929-1:2020)
- [20] AlphaVision® 7, Alpha Particle Spectrum Acquisition and Analysis for Microsoft® Windows® 10, Software User's Manual, Software Version 7, 2021
- [21] ANSI/HPS N13.30-2011, Performance Criteria for Radiobioassay
- [22] Currie, L. A.: Limits for qualitative detection and quantitative determination, Anal. Chem. 40, 586 - 593 (1968)
- [23] KTA 1503.1 (2016-11) Überwachung der Ableitung gasförmiger und an Schwebstoffen gebundener radioaktiver Stoffe; Teil 1: Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminfortluft bei bestimmungsgemäßigem Betrieb
- [24] Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosis Teil 2: Ermittlung der Körperdosis bei innerer Strahlenexposition (Inkorporationsüberwachung) (§§ 40, 41 und 42 StrlSchV) vom 12. Januar 2007

