

APPLICATION NOTE AN-002\_DE

**Messprinzip - Statistik - Versuchsplanung**

Version Juni 2007

Bei der Messung der Aktivitätskonzentration des Edelgases Radon handelt es sich stets um eine radiometrische, d.h. eine zählende Messung. Daraus ergeben sich eine Reihe von Besonderheiten, deren Kenntnis für die Durchführung einer Messung und die richtige Interpretation der erhaltenen Messwerte unumgänglich ist.

Jedem, der Radonmessungen durchführt sei deshalb dringend geraten sich mit den folgenden Kapiteln „Funktionsprinzip“ und „Statistischer Fehler“ intensiv auseinander zu setzen.

### Funktionsprinzip

Die Radon Aktivitätskonzentration wird anhand der in einer Messkammer entstehenden kurzlebigen Folgeprodukte bestimmt. Direkt nach dem Zerfall des Radons (Alpha-Strahler) liegt der verbleibende Po-218 Restkern als positives Ion vor, da durch den emittierten Heliumkern Elektronen aus der Atomhülle gerissen werden. Diese Ionen werden durch ein angelegtes elektrostatisches Feld auf der Oberfläche eines Halbleiterdetektors abgeschieden. Die Anzahl der pro Zeiteinheit gesammelten Po-218 Ionen ist der Radonkonzentration in der Messkammer proportional.

Po-218, ebenfalls ein Alpha Strahler, zerfällt mit einer Halbwertszeit von 3,05 Minuten auf der Oberfläche des Detektors, von welchem ca. 50 % der Zerfälle (Halbraum) registriert werden. Das Aktivitätsgleichgewicht zwischen Radon und Po-218 ist nach ca. 5 Halbwertszeiten, also ca. 15 Minuten erreicht. Dadurch wird die schnellstmögliche Ansprechzeit des Gerätes bezüglich einer sprunghaften Änderung der Radonkonzentration bestimmt.

Entsprechend der Zerfallsreihe setzt sich der radioaktive Zerfallsprozess mit den beiden Beta-Emittern Pb-214 und Bi-214 und dem darauf folgenden Alpha-Zerfall des daraus entstehenden Po-214 fort. Daraus folgt, dass jeder Po-218 Zerfall ein weiteres mal durch den Zerfall von Po-214 am Detektor sichtbar wird. Dieser erfolgt durch die Halbwertszeiten der dazwischenliegenden Nuklide allerdings verzögert, so dass sich das Aktivitätsgleichgewicht zwischen Po-218 und Po-214 erst nach ca. 3 Stunden einstellt.

Die Emissionsenergien von Po-218 und Po-214 sind verschieden, so dass beide Nuklide mittels Alpha-Spektroskopie separiert werden können.

Spektroskopisch arbeitende Monitore bieten die Auswahl zwischen zwei Berechnungsarten für die Radonkonzentration. Im sogenannten „Slow-Mode“ werden sowohl das Po-218 als auch das Po-214 in die Berechnung einbezogen, während im „Fast-Mode“ lediglich das „schnelle“ Po-218 verwendet wird.

Der Vorteil des „Fast-Mode“ ist die schnelle Ansprechzeit hinsichtlich auftretender Konzentrationsänderungen während im „Slow-Mode“ die Sensitivität (detektierte Zerfälle pro Zeit und Radonkonzentration) verdoppelt wird. Die erhöhte Sensitivität reduziert den statistischen Fehler der Messung, welcher direkt durch die Anzahl der innerhalb der Messung registrierten Zerfälle definiert wird. Der Anwender sollte den Berechnungsmodus

entsprechend den applikationsspezifischen Erfordernissen anpassen (Siehe auch Abschnitt „Statistischer Fehler“).

Im Falle von Thoron (Rn-220) erfolgt die Messung ausschließlich anhand des direkten Folgeproduktes Po-216. Der Abscheidungsprozess ist identisch zum Po-218. Da die Halbwertszeit von Po-216 unter einer Sekunde liegt, ist der Gleichgewichtszustand zwischen Thoron und Po-216 Aktivitätskonzentration faktisch sofort gegeben und damit der Messwert umgehend verfügbar.

Die Halbwertszeit des Po-216 Folgeproduktes Pb-212 ist mit mehr als zehn Stunden für eine einigermaßen zeitnahe Messung zu lang, so dass die entstehenden Alpha-Emitter Po-212 und Bi-212 zwar detektiert, nicht aber zur Konzentrationsbestimmung verwendet werden. Die Thoron-Folgeprodukte werden ebenfalls mittels Alpha-Spektroskopie separiert.

## Statistischer Fehler

Der radioaktive Zerfall ist ein statistischer Prozess. Das heißt, auch bei einer konstanten Radonkonzentration wird die Anzahl  $N$  der beobachteten Zerfälle in verschiedenen gleich langen Zeitintervallen verschieden groß sein.  $N$  schwankt um einen Mittelwert, der über alle Intervalle gebildet werden kann. Würde man unendlich viele Intervalle mitteln, so erhielte man den tatsächlichen oder „wahren“ Wert für  $N$ . Die für ein einzelnes Intervall gemessene Anzahl von Zerfällen liegt entweder über oder unter dem „wahren“ Wert. Diese Abweichung bezeichnet man als den „Statistischen Fehler“ einer Radioaktivitätsmessung.

Deshalb wird für jede Messung neben dem berechneten Wert ein Fehlerbereich (Error Band) mit zugehörigem Vertrauensintervall angegeben. Gewöhnlich werden Vertrauensbereiche als Vielfaches der Standardabweichung Sigma ( $\sigma$ ) angegeben, z.B.  $1\sigma$ ,  $2\sigma$  oder  $3\sigma$  welches einer Annahmewahrscheinlichkeit von 68,3 %, 95,45 % bzw. 99,73 % entspricht.

Die richtige Interpretation für das folgende Beispiel eines Messergebnisses von  $780 \text{ Bq/m}^3 \pm 15\%$  für einen 1-Sigma Vertrauensbereich lautet:

Der wahre Wert der Radonkonzentration liegt mit einer Wahrscheinlichkeit von 68,3 % im Bereich von  $663 \text{ Bq/m}^3$  ( $780 \text{ Bq/m}^3 - 15\%$ ) bis  $897 \text{ Bq/m}^3$  ( $780 \text{ Bq/m}^3 + 15\%$ ).

## Abschätzung des zu erwartenden Statistischen Fehlers

Der relative statistische Fehler  $E$  für einen Vertrauensbereich von  $k$ -Sigma kann sehr leicht aus der Anzahl der beobachteten Zerfälle  $N$  (gilt für  $N \geq 16$ ) durch folgende Gleichung berechnet werden

$$E[\%] = 100\% \cdot k \cdot \sqrt{N} / N$$

Die simple Schlussfolgerung lautet: Je größer die Anzahl der detektierten Zerfälle, umso größer ist die Genauigkeit der Messung.

Betrachtet man das Ganze vom entgegengesetzten Standpunkt, könnte man fragen: Wie viele Zerfälle müssen detektiert werden, um eine vorgegebene Genauigkeit zu erreichen?

Zwei Dinge beeinflussen die gezählte Impulszahl, die Sensitivität des Messgerätes einerseits und zum anderen die Länge des Intervalls, das zur Zählung verwendet wird. Während die Sensitivität eine Gerätekonstante ist, kann das Zählintervall (auch als Integrationsintervall bezeichnet) beliebig verlängert werden, sofern nicht die gewünschte Zeitauflösung der Messung beeinträchtigt wird.

Die Beziehung zwischen der im Intervall  $T$  detektierten Anzahl von Impulsen  $N$  und der daraus berechneten Radonkonzentration  $C_{\text{Rn}}$  lautet:

$$C_{\text{Rn}} = N / (T \cdot S)$$

wobei  $S$  die Sensitivität des Gerätes in der Einheit [cts/(min\*kBq/m<sup>3</sup>)] angibt.

Die Sensitivität im „Slow-Mode“ ist etwa doppelt so hoch wie im „Fast-Mode“ (siehe Abschnitt Funktionsprinzip), deshalb sollte dieser verwendet werden, wenn eine Ansprechzeit kleiner als zwei Stunden nicht erforderlich ist (z.B. Messung eines Tagesganges).

Für die folgenden Beispiele soll eine Sensitivität von 4 bzw. 8 cts/(min\*kBq/m<sup>3</sup>) angenommen werden.

Eine erste Frage beim Einsatz des Gerätes könnte sein:

Welches Integrationsintervall muss ich wählen, um eine zu erwartende Radonkonzentration (oder einen vorgegebenen Grenzwert) von 200 Bq/m<sup>3</sup> mit einem statistischen 1-Sigma Fehler von < 10 % zu bestimmen?

Um einen 1-Sigma Fehler von maximal 10 % zu erhalten müssen mindestens 100 Zerfälle registriert werden ( $100\% \cdot 1 \cdot \sqrt{(100)/100} = 10\%$ ). Für den „Fast-Mode“ würde sich dann

$$T(\text{fast}) = N / (C_{\text{Rn}} \cdot S) = 100 \text{ cts} / (0,2 \text{ kBq/m}^3 \cdot 4 \text{ cts}/(\text{min} \cdot \text{kBq/m}^3)) = 125 \text{ min}$$

ergeben. Da das erforderliche Messintervall mehr als zwei Stunden beträgt, ist der „Slow-Mode“ die bessere Wahl für diese Messung:

$$T(\text{slow}) = N / (C_{\text{Rn}} \cdot S) = 100 \text{ cts} / (0,2 \text{ kBq/m}^3 \cdot 8 \text{ cts}/(\text{min} \cdot \text{kBq/m}^3)) = 62,5 \text{ min.}$$

Aufgrund der längeren Ansprechzeit im „Slow-Mode“ kann das Intervall aus physikalischer Sicht auf 120 Minuten erweitert werden. Der dafür zu erwartende statistische Fehler berechnet sich dann aus der zu erwartenden Impulsanzahl:

$$N(\text{slow}) = C_{\text{Rn}} \cdot T \cdot S = 0,2 \text{ kBq/m}^3 \cdot 120 \text{ min} \cdot 8 \text{ cts}/(\text{min} \cdot \text{Bq/m}^3) = 192 \text{ cts}$$

$$E(1\sigma) = 100\% \cdot 1 \cdot \sqrt{(N)} / N = 100\% \cdot 1 \cdot \sqrt{(192)} / 192 = 7,22\%$$

Nun könnte eine 68,3 %-ige Sicherheit nicht ausreichend signifikant erscheinen und ein  $2\sigma$  Vertrauensbereich angesetzt werden:

$$E(2\sigma) = 100\% \cdot 2 \cdot \sqrt{(N)} / N = 100\% \cdot 2 \cdot \sqrt{(192)} / 192 = 14,44\%$$

Zur Interpretation des Ergebnisses siehe Beginn dieses Kapitels.

Ist eine beobachtete Konzentrationsänderung statistisch signifikant oder nicht?

Wenn man sich den Zeitverlauf der Radonkonzentration anschaut, sind Änderungen von Messpunkt zu Messpunkt zu sehen. Es ergibt sich die Frage: Liegt eine tatsächliche Änderung der Radonkonzentration vor oder handelt es sich lediglich um statistische Schwankungen.

Der Test ist relativ simpel. Man betrachtet die für einen gewählten Vertrauensbereich berechneten Fehlerintervalle zweier interessierender Messpunkte und prüft ob diese sich überlappen. Ist dies der Fall, kann es sich um eine statistische Schwankung handeln. Andernfalls liegt eine tatsächliche Konzentrationsänderung mit der gewählten Wahrscheinlichkeit vor.

*Beispiel 1:*

Messwert 1: 1500 Bq/m<sup>3</sup> ± 10 % → Fehlerintervall [1350 ... 1650 Bq/m<sup>3</sup>]

Messwert 2: 1300 Bq/m<sup>3</sup> ± 13 % → Fehlerintervall [1131 ... 1469 Bq/m<sup>3</sup>]

Da der obere Grenzwert des Messwertes 2 größer als der untere Grenzwert des ersten Messwertes ist, liegt eine Überlappung der Fehlerintervall vor. Da der „wahre“ Wert der

Radonkonzentration zwischen 1350 Bq/m<sup>3</sup> und 1469 Bq/m<sup>3</sup> liegen könnte, kann nicht von einer signifikanten Konzentrationsänderung ausgegangen werden.

*Beispiel 2:*

Messwert 1: 1500 Bq/m<sup>3</sup> ± 10 % → Fehlerintervall [1350 ... 1650 Bq/m<sup>3</sup>]

Messwert 2: 1000 Bq/m<sup>3</sup> ± 15 % → Fehlerintervall [850 ... 1150 Bq/m<sup>3</sup>]

Die beiden Fehlerintervalle überlappen sich nicht, somit ist die Konzentrationsänderung statistisch signifikant.

Es können zwei beliebige Messpunkte innerhalb einer Messreihe in dieser Art und Weise hinsichtlich einer Konzentrationsänderung getestet werden. Diese müssen nicht notwendigerweise benachbart sein.

## Nachweisgrenze

Als Nachweisgrenze wird derjenige Wert der Radonkonzentration bezeichnet, bei dem mit einer vorgegebenen Wahrscheinlichkeit (Vertrauensintervall) innerhalb eines jeden Integrationsintervalls ein Wert größer als Null gemessen wird (d.h. wenigstens ein Zerfall registriert wird).

Die Kenntnis der Nachweisgrenze hat folgenden Hintergrund: Ist das gewählte Integrationsintervall kurz und die Radonkonzentration klein, liegt der zu erwartende „wahre“ Wert für die innerhalb des eingestellten Intervalls registrierten Zerfälle u.U. im Bereich um 1 oder sogar noch darunter. Aufgrund der statistischen Schwankungen würden mit entsprechender Häufigkeit Intervalle auftreten, in denen kein einziger Zerfall registriert wird.

Im Extremfall könnte die Messreihe aus vielen „Nullwerten“ und einem Intervall mit einem einzigen registrierten Zerfall bestehen, da dieser (da er nicht teilbar ist) irgendwann auftreten muss. Aufgrund der Formel für die Berechnung der Radonkonzentration (T im Nenner) wird ein überhöhter Konzentrationswert für dieses Intervall ausgegeben, während alle anderen Intervalle eine Konzentration von 0 zeigen. Um ein verwertbares Ergebnis zu erhalten, müssten alle Intervalle gemittelt werden, so dass der eine registrierte Zerfall zeitlich gewichtet wird. Dies stellt nichts anderes als die Erweiterung des Integrationsintervalls und damit die Absenkung der Nachweisgrenze auf den für die anliegende Radonkonzentration erforderlichen Wert dar.

Da die mittlere Anzahl („wahrer“ Wert) registrierter Zerfälle im Bereich der Nachweisgrenze kleiner als 16 ist, wird die statistische Schwankungsbreite mit Hilfe der Poisson Verteilung ermittelt. Der angegebene Vertrauensbereich entspricht der Wahrscheinlichkeit, dass die Anzahl der detektierten Zerfälle innerhalb eines Integrationsintervalls größer als Null ist.

Vertrauensbereich	Erforderlicher Erwartungswert für N
63,2 %	1
95 %	3
99,75 %	6

*Beispiel:*

Es soll die Nachweisgrenze des Monitors im „Fast-Mode“ bei eingestelltem Integrationsintervall von 60 min angegeben werden. Das Vertrauensintervall soll 95 % betragen (bei 95 von 100 Integrationsintervallen ist die Anzahl detektierter Zerfälle größer Null)

Notwendiger Erwartungswert (Impulszahl aus Tabelle) N = 3.

Aus  $C = N/(T \cdot S)$  ergibt sich die zugehörige Nachweisgrenze:

$$C = 3 \text{ cts} / (60 \text{ min} \cdot 8 \text{ cts}/(\text{min} \cdot \text{kBq}/\text{m}^3)) = 0,00625 \text{ kBq}/\text{m}^3 = 6,25 \text{ Bq}/\text{m}^3$$

Dieses Datenblatt dient einzig und allein Informationszwecken und kann daher in seinem Inhalt jederzeit geändert werden. SARAD GmbH gibt keine Garantie für jegliche in diesem Dokument gemachten ausdrücklichen oder implizierten Angaben. © SARAD GmbH. Alle Rechte vorbehalten.