

RIVM rapport 610013001/2006

**De validatie van de Nederlandse voornormen NVN 5622,  
NVN 5627, NVN 5636 en NEN 6421**

Totaal-alfa en totaal-beta activiteit in vaste stof, luchtfilters  
en water

PJM Kwakman, ER van der Graaf<sup>1</sup> en P de Jong<sup>2</sup>

1 Kernfysisch Versneller Instituut, Groningen

2 Nuclear Research Group, Arnhem

Contact:

Pieter Kwakman

RIVM, Laboratorium voor Stralingsonderzoek

e-mail: [pieter.kwakman@rivm.nl](mailto:pieter.kwakman@rivm.nl)

Dit onderzoek is uitgevoerd in opdracht van NEN en is beschreven in het jaarplan RIVM onder projectnummer 610013, Validatie NVN normen.

Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, Postbus 1, 3720 BA Bilthoven, tel. 030-2749111, fax 030-2742971



## Rapport in het kort

### **De validatie van de Nederlandse voornormen NVN 5622, NVN 5627, NVN 5636 en NEN 6421**

Vier Nederlandse normen, die van belang zijn voor het vaststellen van concentraties aan radioactieve stoffen die zogenaamde alfa- of bèta-straling uitzenden, zijn gevalideerd. Totaal alfa- en totaal bèta-bepalingen zijn onder andere van groot nut bij een snelle en simpele screening van milieumonsters ten tijde van een nucleair ongeval.

Het gaat om de normen NVN 5622, NVN 5627, NVN 5636 en NEN 6421. In opdracht van het Nederlandse Normalisatie-instituut heeft het RIVM deze validatie uitgevoerd samen met het Kernfysisch Versneller Instituut (KVI) en de Nuclear Research en Consultancy Group (NRG).

De normteksten zijn bijgewerkt en gemoderniseerd. Daarnaast zijn de prestatiekenmerken van de normen vastgesteld. Het gaat daarbij om haalbaarheid, juistheid, reproduceerbaarheid en aantoonbaarheid. Deze prestatiekenmerken zijn vastgesteld door middel van onderzoek in zes tot tien laboratoria.

Trefwoorden: totaal alfa, totaal bèta, validatie, normen, vaste stof, filters, water

## **Abstract**

### **The validation of the Dutch pre-norms NVN 5622, NVN 5627, NVN 5636 and NEN 6421**

Reported here is the validation of four Dutch standards that are important for determining the concentration of radionuclides emitting so-called alpha or beta radiation. Both gross-alpha and gross-beta measurements are very useful for fast and easy screening of environmental samples after a nuclear accident. The texts for the standards were both improved and modernised.

RIVM carried out this validation in cooperation with the Kernfysisch Versneller Instituut and the Nuclear Research and Consultancy Group for the standards NVN 5622, NVN 5627, NVN 5636 and NEN 6421. The validation was commissioned by the Netherlands Normalisation Institute.

Analytical characteristics of the standards, including repeatability, accuracy, reproducibility and detection limit, were also determined by intercomparison in 6 to 10 laboratories.

Keywords: gross-alpha, gross-bèta, validation, norms, solids, filters, water

# Inhoud

<b>Samenvatting</b>	<b>9</b>
<b>1. Inleiding</b>	<b>11</b>
1.1 Historie	11
1.2 Van voornorm naar gevalideerde Nederlandse norm	11
1.3 Herziening tot NEN van NVN 5622, 5627 en 5636, en validatie van NEN 6421	12
1.4 Te valideren normteksten	13
1.5 Deelnemers aan het interlaboratorium-validatieonderzoek	13
1.6 Start en doorloop	14
<b>2. Toegepaste toetsen en modellen</b>	<b>15</b>
2.1 Berekeningswijze van prestatiekenmerken	15
2.2 Toets op uitbijters	18
2.2.1 Mandel <i>h</i> -toets: interlaboratoriumuitbijters	18
2.2.2 Mandel <i>k</i> -toets: intralaboratorium uitbijters	18
2.2.3 Grubbs' uitbijtertest voor enkelvoudige metingen	19
<b>3. Concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627</b>	<b>21</b>
3.1 Voorwoord	21
3.2 Materialen voor validatieonderzoek	21
3.2.1 Radionuclidenoplossingen	22
3.2.2 Aanmaak rondzendmonsters voor concept-NEN 5622	22
3.2.3 Homogeniteitstest van rondzendmonsters voor concept-NEN 5622	22
3.2.4 Aanmaak rondzendmonsters voor concept-NEN 5627	23
3.2.5 Homogeniteitstest van rondzendmonsters voor concept-NEN 5627	24
3.2.6 Rondzendmonsters voor interlaboratorium-validatieonderzoek	24
3.2.7 Toegepaste detectietechniek en efficiënties	25
3.3 Intralaboratorium-validatie	25
3.3.1 Herhaalbaarheid	25
3.3.2 Reproduceerbaarheid	26
3.3.3 Uitbijters en uitvallers	27
3.3.4 Juistheid	27
3.3.5 Aantoonbaarheidsgrens	28
3.4 Interlaboratorium-validatie	29
3.4.1 Analyseresultaten	29
3.4.2 Uitbijters en uitvallers	32
3.4.3 Reproduceerbaarheid	32
3.4.4 Juistheid	32
3.5 Prestatiekenmerken, conclusies en aanbevelingen	33
3.5.1 Prestatiekenmerken	33
3.5.2 Conclusies	34
3.5.3 Aanbevelingen	35
3.6 Bijlagen	36
3.6.1 Broncertificaat van <sup>241</sup> Am	36
3.6.2 Broncertificaat van <sup>90</sup> Sr	37
3.6.3 Analyseresultaten concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627	38

<b>4.</b>	<b>Concept-NEN 5636</b>	<b>41</b>
4.1	<i>Voorwoord</i>	41
4.2	<i>Overzicht van uitgangsmaterialen en hulpmiddelen</i>	41
4.2.1	Filters	41
4.2.2	Radionuclidenoplossingen en kalibratiebronnen	41
4.2.3	Verdunningen van de radionuclide-oplossingen	42
4.2.4	Containers	42
4.2.5	Stralingsmeetapparatuur	42
4.2.6	Alfa- en bèta-metingen	43
4.3	<i>Materialen voor validatieonderzoek</i>	43
4.3.1	Motivatie van gemaakte keuzes	43
4.3.2	Aanmaak filters voor het validatieonderzoek	44
4.3.3	Homogeniteitstesten	44
4.3.4	Selectie van de filters	47
4.4	<i>Intralaboratorium-validatie</i>	48
4.4.1	Herhaalbaarheid	48
4.4.2	Reproduceerbaarheid	49
4.4.3	Uitbijters en uitvallers	49
4.4.4	Juistheid	50
4.4.5	Aantoonbaarheidsgrens	50
4.5	<i>Interlaboratorium-validatie</i>	51
4.5.1	Analyse resultaten	51
4.5.2	Uitbijters en uitvallers	52
4.5.3	Reproduceerbaarheid	53
4.5.4	Juistheid	55
4.6	<i>Prestatiekenmerken, conclusies en aanbevelingen</i>	57
4.6.1	Prestatiekenmerken	57
4.6.2	Conclusies	58
4.6.3	Aanbevelingen	58
4.7	<i>Bijlagen - certificaten van de radionuclideoplossingen en de bronnen</i>	60
4.7.1	Certificaat van de <sup>241</sup> Am oplossing	60
4.7.2	Certificaat van de <sup>137</sup> Cs oplossing	61
4.7.3	Certificaat van de <sup>241</sup> Am-standaardbron (deel 1)	62
4.7.4	Certificaat van de <sup>90</sup> Sr/ <sup>90</sup> Y- standaardbron (deel 1)	64
4.7.5	Analyseresultaten interlaboratorium-validatie concept-NEN 5636	66
<b>5.</b>	<b>Concept-NEN 6421</b>	<b>69</b>
5.1	<i>Voorwoord</i>	69
5.2	<i>Materialen voor validatieonderzoek</i>	69
5.2.1	Monsterneming en -voorbereiding	69
5.2.2	Rondzendmonster Wb	70
5.2.3	Rondzendmonster Wc	70
5.2.4	Homogeniteitstest	71
5.2.5	Additionele analyses	71
5.3	<i>Intralaboratorium-validatie</i>	72
5.3.1	Herhaalbaarheid	72
5.3.2	Reproduceerbaarheid	72
5.3.3	Uitbijters en uitvallers	72
5.3.4	Aantoonbaarheidsgrens	72
5.4	<i>Interlaboratorium-validatie</i>	73
5.4.1	Analyseresultaten	73
5.4.2	Uitbijters en uitvallers	74

5.4.3	Reproduceerbaarheid	75
5.4.4	Juistheid	75
5.5	<i>Prestatiekenmerken, conclusies en aanbevelingen</i>	77
5.5.1	Prestatiekenmerken	77
5.5.2	Conclusies	78
5.5.3	Aanbevelingen	78
5.6	<i>Bijlagen</i>	80
5.6.1	Certificaat <sup>137</sup> Cs-oplossing	80
5.6.2	Analyseresultaten concept-NEN 6421 monster Wa	82
5.6.3	Analyseresultaten concept-NEN 6421 monster Wb	83
5.6.4	Analyseresultaten concept-NEN 6421 monster Wc	84
5.6.5	Bewerkte analyseresultaten concept-NEN 6421	85
5.6.6	Nagezonden notitie met aanvullende vragen	86
5.6.7	Resultaten van de aanvullende vragen	87
<b>6.</b>	<b>Commentaar van deelnemers aan interlaboratorium-validatie</b>	<b>89</b>
6.1	<i>Concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627</i>	89
6.2	<i>Concept-NEN 5636</i>	89
6.3	<i>Concept-NEN 6421</i>	90
<b>7.</b>	<b>Slotconclusies</b>	<b>91</b>
7.1	<i>Voldoen de resultaten van het validatieonderzoek ?</i>	91
7.2	<i>Concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627</i>	92
7.3	<i>Concept-NEN 5636</i>	93
7.4	<i>Concept-NEN 6421</i>	95





## Samenvatting

In opdracht van het ministerie van VROM heeft de normcommissie Radioactiviteitsmetingen een groot aantal voornormen gepubliceerd voor de meting van radioactiviteit in het kader van het Nationaal Plan Kernongevallenbestrijding. De normcommissie heeft aangegeven dat ten minste een deel van deze voornormen moet worden gevalideerd, zodat ze als Nederlandse norm kunnen worden uitgebracht. VROM heeft daarom het Nederlands Normalisatie-instituut opdracht gegeven zorg te dragen voor de validatie van de onderstaande voornormen:

- NVN 5622 (Bepaling van de massieke totaal alfa-activiteit van een vast telmonster door middel van de dikke laag methode);
- NVN 5627 (Bepaling van de massieke totaal bèta-activiteit en massieke rest-bèta-activiteit van een vast telmonster);
- en NVN 5636 (Bepaling van de kunstmatige totaal alfa, kunstmatige totaal bèta-activiteit en gamma-spectrometrie van luchtfilters en berekening van de volumieke activiteit van de bemonsterde lucht).

Tegelijk met de validatie van de bovenstaande drie voornormen is NEN 6421 (Bepaling van totaal bèta-activiteitsconcentratie en rest-bèta-activiteitsconcentratie van niet vluchtige bestanddelen) vanwege de grote overlap gevalideerd.

Drie Nederlandse instituten hebben de validatie van de bovengenoemde normen uitgevoerd. KVI (NVN 5636), NRG-Arnhem (NEN 6421) en RIVM (NVN 5622 en NVN 5627) hebben de normteksten op correctheid gecontroleerd, en de prestatiekenmerken herhaalbaarheid, juistheid, reproduceerbaarheid, nauwkeurigheid en aantoonbaarheidsgrens in een intralaboratorium-validatieonderzoek vastgesteld. In een interlaboratorium-ringonderzoek waar, afhankelijk van de norm, zes tot tien laboratoria aan deelgenomen hebben, zijn verder de prestatiekenmerken reproduceerbaarheid en juistheid vastgesteld. Zie de onderstaande tabellen A-D.

*Tabel A Prestatiekenmerken van concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627 in intralaboratorium-validatie*

Prestatiekenmerk	concept-NEN 5622 totaal alfa	concept-NEN 5627 totaal bèta
Herhaalbaarheid, $v_{C_r}$	2,8 % tot 5,7 %	1,1 % tot 2,2 %
Reproduceerbaarheid, $v_{C_{RW}}$	4,3 % tot 6,8 %	1,2 % tot 1,7 %
Juistheid	-0,6 % tot -5,7 %	-14 % tot + 13 %
Aantoonbaarheidsgrens, $Bq \cdot g^{-1}$	0,20 ( $\pm 0,03$ )	0,046 ( $\pm 0,004$ )

*Tabel B Interlaboratorium reproduceerbaarheid en juistheid van concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627*

Prestatiekenmerk	concept-NEN 5622	concept-NEN 5627
	totaal alfa	totaal bèta
Reproduceerbaarheid, $v_{CR}$	10 % – 13 %	3 % – 16 %
Juistheid	-7 % – -15 %	-14 % – 16 %

### *Concept-NEN 5636*

De prestatiekenmerken van concept-NEN 5636 zijn samengevat in tabel C. Deze zijn onderverdeeld naar glasvezel en membraanfilters, de in de norm genoemde filtertypen. Onjuistheid wordt alleen genoemd voor bèta-metingen en is afgeleid voor  $^{137}\text{Cs}$ .

*Tabel C Overzicht prestatiekenmerken concept-NEN 5636.*

Filtertype	alfa-bepaling		bèta-bepaling	
	glasvezel	membraan	glasvezel	membraan
<b>Kenmerk</b>				
Herhaalbaarheid	4,0 %	4,9 %	1,5 %	3,0 %
Intralaboratorium-reproduceerbaarheid	4,7 %	4,8 %	1,6 %	3,3 %
Interlaboratorium-reproduceerbaarheid	50 %	44 %	13 %	14 %
Onjuistheid ( $^{137}\text{Cs}$ ), intralaboratorium	--	--	$(-10,3 \pm 1,4) \%$	$(-3,0 \pm 3,0) \%$
Onjuistheid ( $^{137}\text{Cs}$ ), interlaboratorium	--	--	$(-24 \pm 10) \%$	$(-7 \pm 13) \%$
Aantoonbaarheidsgrens (Bq)	0,022	0,014	0,074	0,081

### *Concept-NEN 6421*

De prestatiekenmerken van (norm) concept-NEN 6421 zijn samengevat in Tabel D. Deze gelden voor een natuurlijk oppervlaktewater. De onjuistheid geldt voor  $^{137}\text{Cs}$ .

*Tabel D Overzicht prestatiekenmerken concept-NEN 6421 (natuurlijk niveau)*

Kenmerk	Gemiddelde	Bereik
Herhaalbaarheid	2 %	
Intralaboratorium-reproduceerbaarheid	6 %	
Interlaboratorium-reproduceerbaarheid	25 %	
Onjuistheid ( $^{137}\text{Cs}$ )	-45 %	-30 tot -55 %
<b>Aantoonbaarheidsgrens</b>		
- bij een meettijd van 60.000 s	0,012 Bq.l <sup>-1</sup>	
- bij een meettijd van 14.400 s	0,019 Bq.l <sup>-1</sup>	
- bij een meettijd van 3600 s	0,035 Bq.l <sup>-1</sup>	

# 1. Inleiding

## 1.1 Historie

In de jaren na het ongeval met de kernenergiereactor in Tsjernobyl in 1986 heeft de NEN-normcommissie Radioactiviteitsmetingen een groot aantal voornormen gepubliceerd voor de monsterneming, de monstervoorbereiding en de meting van radioactiviteit in het kader van het Nationaal Plan Kernongevallenbestrijding (NPK [1]).

Genormaliseerde en gevalideerde meetmethoden zijn enerzijds nodig om een controle op vastgestelde grenswaarden te hebben en anderzijds om eenduidige en vergelijkbare meetresultaten te verkrijgen. In het kader van het NEN-rapport betreffende de herziening van Nederlandse voornormen [2] is de noodzaak van actualisering van de voornormen gebleken.

De voornormen zijn destijds opgesteld in het kader van de projecten Normstar 1 en Normstar 2. Aangezien er in de meeste gevallen onvoldoende ervaring was met de genormaliseerde methoden, is destijds besloten de methoden als Nederlandse voornormen te publiceren. De normcommissie Radioactiviteitsmetingen heeft aangegeven dat de voornormen bij een herziening moeten worden gevalideerd, zodat ze als Nederlandse norm kunnen worden uitgebracht.

## 1.2 Van voornorm naar gevalideerde Nederlandse norm

In het kader van het Actieprogramma Normalisatie en Validatie van Milieumeetmethoden (ANVM) is een begin gemaakt met het valideren van enkele voornormen. In dit kader is de methode voor de bepaling van activiteit van gammastraling uitzendende nucliden gevalideerd en als NEN 5623 gepubliceerd [3], gevolgd door concept-NEN 5648, NEN 5697 en NEN 5699 [4,5,6].

Een projectgroep met deskundigen van NEN, NMI, NRG, KVI en RIVM heeft de Nederlandse voornormen geïnventariseerd en in een rapport aanbevelingen gedaan betreffende het

- 
- 1 Nationaal Plan voor de Kernongevallenbestrijding, Tweede Kamer der Staten Generaal, vergaderjaar 1988-1989, 21015, nr 3 (VROM rapport 90044/2-89).
  - 2 RJ Zwart et al. Haalbaarheid van herziening of vervanging van Nederlandse voornormen voor radioactiviteitsmetingen. NEN, 2003.
  - 3 NEN 5623 (2002). Bepaling van de activiteit van gammastraling uitzendende nucliden in een telmonster met halfgeleider gammaspectrometrie. NEN, Delft.
  - 4 Ontwerp NVN 5648 (1997). Bepaling van het omgevingsdosisequivalenttempo. NEN, Delft.
  - 5 NEN 5697 (2001). Bepaling van de natuurlijke radioactiviteit in steenachtige bouwproducten met behulp van halfgeleider-gammaspectrometrie. NEN, Delft.
  - 6 NEN 5699 (2001). Methode voor de bepaling van de radonexhalatiesnelheid van steenachtige bouwproducten. NEN, Delft

omzetten van een voornorm in een officiële norm (NEN) of in een Nederlandse praktijkrichtlijn (NPR) [2]. Het ministerie van VROM heeft opdracht gegeven tot omzetting of herziening van de voornormen die in het onderstaande rapport de hoogste prioriteit hebben. Het betreft NVN 5622, NVN 5627 en NVN 5636 [7,8,9].

Hierbij dient opgemerkt te worden dat het uitvoeren van gammaspectrometriemetingen, zoals beschreven in NVN 5636, buiten het bestek van het validatietraject valt. Hiervoor wordt verwezen naar de gevalideerde norm NEN 5623 [3].

Het valideren van NEN 6421 [10] is tevens in dit traject opgenomen omdat het een nauw verwant onderwerp betreft en het geheel een duidelijke meerwaarde geeft.

### **1.3 Herziening tot NEN van NVN 5622, 5627 en 5636, en validatie van NEN 6421**

NEN heeft in het najaar van 2003 een aantal Nederlandse instituten verzocht om voor de validatie van de genoemde NVN's een offerte uit te brengen. NEN streefde naar een 'samenwerkingsverband' van instituten waarbij één instituut de projectleiding op zich neemt en het voorbereidende laboratoriumwerk van de organisatie verdeeld wordt over 2 of 3 laboratoria. De hoeveelheid laboratoriumwerk was namelijk, naar het zich liet aanzien, voor één laboratorium moeilijk uit te voeren. In het voorjaar van 2004 is in overleg tussen E. van der Graaf (KVI), P. de Jong (NRG-Arnhem), H. Reinen en P. Kwakman (RIVM) de onderstaande taakverdeling overeengekomen:

- RIVM organiseert projectcoördinatie en de validatie van NVN 5622 en NVN 5627;
- KVI organiseert de validatie van NVN 5636;
- NRG organiseert de validatie van NVN 6421.

Zoals hierboven beargumenteerd, is het opnemen van NEN 6421 in deze validatie logisch omdat het een verwant onderwerp betreft en het aan het totaal een duidelijke meerwaarde geeft. In de eerste offerte van RIVM (april 2004) is dan ook het totale pakket aan normen (NVN 5622, 5627, 5636 en NEN 6421) opgenomen. Op advies van NEN en VROM is deze offerte ontvlochten en later in twee delen ingediend: een deel voor de validatie van NVN 5622, 5627 en 5636, en een deel voor de validatie van NEN 6421. In september 2004 zijn deze offertes toegekend.

- 
- 7 NVN 5622 (1990). Bepaling van de massieke totale alfa-activiteit van een vast telmonster met de dikkelaagmethode. NEN, Delft.
  - 8 NVN 5627 (1990). Bepaling van de massieke totale bèta-activiteit en massieke rest-bèta-activiteit van een vast telmonster. NEN, Delft.
  - 9 NVN 5636 (1991). Bepaling van de kunstmatige totale alfa-activiteit, kunstmatige totaal bèta-activiteit en gamma-spectrometrie van luchtfilters en berekening van de volumieke activiteit van de bemonsterde lucht. NEN, Delft.
  - 10 NEN 6421 (1987). Water – Bepaling van volumieke totaal bèta-activiteitsconcentratie en volumieke rest-bèta-activiteitsconcentratie van niet vluchtige bestanddelen. NEN, Delft.

## 1.4 Te valideren normteksten

Een evaluatie van de te valideren normteksten maakte onderdeel uit van de opdracht. De normteksten zijn medio 2004 op onjuistheden en onduidelijkheden gecontroleerd, waarbij er verbeterde tekstvoorstellen zijn gedaan. De tekstvoorstellen zijn besproken in de normcommissie Radioactiviteitsmetingen van 8 september 2004. Na aanpassing van de teksten heeft NEN de ‘groene’ normontwerpen gepubliceerd en verspreid. Het hierop ontvangen commentaar is vervolgens besproken in de commissievergadering van 26 januari 2005. De versies waarin dit laatste commentaar is verwerkt zijn als concept-NEN gebruikt voor het intralaboratorium- en interlaboratorium-validatieonderzoek in de zomer van 2005.

## 1.5 Deelnemers aan het interlaboratorium-validatieonderzoek

Aan het interlaboratorium-validatieonderzoek hebben diverse laboratoria deelgenomen. In de onderstaande tabel staan de deelnemende laboratoria, de contactpersonen en de norm-validaties waaraan zij deelgenomen hebben.

*Tabel 1 Deelnemers aan het interlaboratorium-validatieonderzoek*

Deelnemer	Contactpersoon, adres	NVN 5622	NVN 5627	NVN 5636	NEN 6421
NRG-Arnhem	NRG-Arnhem, P. de Jong, Postbus 9034, 6800 ES Arnhem	X	X	X	X
NRG-Petten	NRG-Petten P. Voors Postbus 25 1755 ZG Petten	X	X	X	X
KVI	RUG - KVI, E. van der Graaf Zernikelaan 25, 9747 AA Groningen	X	X	X	X
RIVM	RIVM – LSO P. Kwakman Ant. Van Leeuwenhoeklaan 9 3721 MA Bilthoven	X	X	X	X
RIZA	RIZA C. Engeler Postbus 17 8200 AA Lelystad	X	X		X
COVRA	COVRA NV J. Welbergen, A. de Best Spanjeweg 1 4455 TW Nieuwdorp			X	X

URENCO	URENCO M. van Wijnkoop Postbus 158 7600 AD Almelo			X	X
Aqualab	Aqualab BV W. Gademan Petrusplaat 1 4251 NN Werkendam	X	X		X
Waterlab Zuid	Waterlaboratorium Zuid L. Keltjens Postbus 3194 4800 DD Breda	X	X		X
Vitens	Vitens Watertechnologie B. Bajema Postbus 400 8901 BE Leeuwarden		X		X

## 1.6 Start en doorloop

Uitgaande van de veronderstelling dat de opdrachtverlening in juni 2004 plaats zou vinden, werd ten tijde van de offerte de onderstaande tijdplanning haalbaar geacht, afhankelijk van de toezegging van financiering voor de validatie van NEN 6421 (zie Tabel 2). In de laatste kolom van Tabel 2 is de gerealiseerde doorloop van de werkzaamheden gegeven.

*Tabel 2 Globale geplande doorloop van de werkzaamheden*

	Korte omschrijving	Periode	Herziene planning
1.	Controle normteksten en doen van tekstvoorstellen	juni 2004	
2.	Normontwerp uitgebracht voor extern commentaar Kritiektermijn drie maanden	oktober- december 2004	
3.	Intralaboratorium onderzoek	januari februari 2005	- maart-mei 2005
4.	Rondzenden van monsters en interlaboratorium- validatie	februari april 2005	- juni 2005
5.	Opstellen concept-eindrapport	juni augustus 2005	- december 2005
6.	Oplevering eindrapport en normteksten van NEN 5622, 5627, 5636 en 6421	december 2005	juli 2006

## 2. Toegepaste toetsen en modellen

Voor het berekenen en vaststellen van intralaboratorium-prestatiekenmerken wordt verwezen naar NEN 7777 [11] en het rapport van van de Wiel [12]. Tevens wordt verwezen voor interlaboratorium-prestatiekenmerken naar de ISO-norm 5727, die ten grondslag ligt aan de beide Nederlandse referenties [13]. In paragraaf 2.1 worden de meest gebruikelijke formules uit de ISO-documenten toegelicht.

### 2.1 Berekeningswijze van prestatiekenmerken

Voor de karakterisering van de interlaboratorium-reproduceerbaarheid zijn per monstertype  $M_t$  ( $t=1, 2, \dots, v$ ) door  $i$  laboratoria ( $i=1, 2, \dots, p$ ) 3 deelmonsters in het laboratorium opgewerkt en geanalyseerd op totaal alfa- en, respectievelijk, totaal bèta-activiteit.

De definitie van de interlaboratorium-reproduceerbaarheid volgens van de Wiel et al. [12] is:

*Maat voor de spreiding tussen meetwaarden verkregen met dezelfde methode op identiek materiaal onder verschillende omstandigheden.*

In Tabel 3 worden de vast te stellen parameters die nodig zijn voor de berekening van de interlaboratorium-reproduceerbaarheid weergegeven. Aangezien de meeste laboratoria NEN 7777 in bezit hebben, in tegenstelling tot de ondergenoemde ISO-normen, is ervoor gekozen om in dit hoofdstuk alleen de relevante formules uit de ISO-normen weer te geven.

---

11 NEN 7777 (2003), Milieu – Prestatiekenmerken van meetmethoden. NEN, Delft.

12 HJ van de Wiel, MAFP van Rooij, H Janssens (1994), Prestatiekenmerken voor Meetmethoden. Termen definities en testprocedures ten behoeve van het Actieprogramma Normalisatie en Validatie van Milieumeetmethoden. RIVM rapport 219101004.

13 ISO 5725 : 1994, Accuracy (trueness and precision) of measurement methods and results – Parts 2, 3, 4 and 6.

Tabel 3 Vast te stellen parameters in interlaboratorium-validatie

Parameter	Totaal alfa en bèta : n resultaten van laboratorium <i>i</i>
Laboratoriumgemiddelde $\bar{y}_i$	Formule 1
Laboratoriumstandaardafwijking $s_i$	Formule 2
Gemiddelde van alle resultaten $\bar{\bar{y}}$	Formule 4
Standaardafwijking van het totale gemiddelde $\bar{\bar{y}}$	Formule 5
Standaardafwijking tussen laboratoria $s_L$	Formule 7
Interlaboratorium-reproduceerbaarheidsstandaardafwijking $s_R$	Formule 8
Juistheid $d$	Formule 9

Voor de schatting van de interlaboratorium-reproduceerbaarheidsstandaardafwijking  $s_R$  voor totaal alfa en totaal bèta zijn de volgende formules toegepast [13]:

- Gemiddelde van de resultaten  $\bar{y}_i$  per laboratorium  $i$  met bijbehorende standaardafwijking  $s_i$ .

$$\bar{y}_i = \frac{1}{n_i} \sum_{k=1}^{n_i} y_{ik} \quad (\text{formule 1})$$

$n_i$  : het aantal resultaten

$y_{ik}$  : resultaat  $k$  ( $k = 1, 2, \dots, n_i$ )

- De standaardafwijking  $s_i$

$$s_i = \sqrt{\frac{1}{n_i - 1} \sum_{k=1}^{n_i} (y_{ik} - \bar{y}_i)^2} \quad (\text{formule 2})$$

In dit rapport is gekozen voor de term ‘variatiecoëfficiënt’ (vc) in plaats van ‘relatieve standaardafwijking’, uitgedrukt in procenten.

- De herhaalbaarheidsstandaardafwijking  $s_r$

$$s_r = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^p (n_i - 1) \cdot s_i^2}{\sum_{i=1}^p (n_i - 1)}} \quad (\text{formule 3})$$



- Het gemiddelde van de alle resultaten  $\bar{\bar{y}}$

$$\bar{\bar{y}} = \frac{\sum_{i=1}^p n_i \cdot \bar{y}_i}{\sum_{i=1}^p n_i} \quad (\text{formule 4})$$

- De standaardafwijking van het totale gemiddelde  $\bar{\bar{y}}$

$$s_d = \sqrt{\frac{1}{p-1} \sum_{i=1}^p n_i (\bar{y}_i - \bar{\bar{y}})^2} \quad (\text{formule 5})$$

- Het totaal aan uitbijtervrije resultaten  $\bar{\bar{n}}$

$$\bar{\bar{n}} = \frac{1}{p-1} \left[ \sum_{i=1}^p n_i - \frac{\sum_{i=1}^p n_i^2}{\sum_{i=1}^p n_i} \right] \quad (\text{formule 6})$$

- De standaardafwijking tussen laboratoria  $s_L$

$$s_L = \sqrt{\frac{s_d^2 - s_r^2}{\bar{\bar{n}}}} \quad (\text{formule 7})$$

- De schatting van de interlaboratorium-reproduceerbaarheidsstandaardafwijking  $s_R$

$$s_R = \sqrt{s_r^2 + s_L^2} \quad (\text{formule 8})$$

De juistheid conform NEN 7777 [11] is het verschil tussen de meetverwachting en de ware referentiewaarde. De schatting van de juistheid  $d$  of de systematische afwijking van het gemiddelde van alle resultaten  $\bar{\bar{y}}$  ten opzichte van de referentiewaarden  $\mu$  (zie Tabel 6 en Tabel 8) wordt berekend met :

$$d = \bar{\bar{y}} - \mu \quad (\text{formule 9})$$

## 2.2 Toets op uitbijters

Voor het bepalen van uitbijters in een dataset zijn de Mandel  $h$ - en  $k$ -toetsen gebruikt, zoals beschreven in ISO 5725-2 [13].

### 2.2.1 Mandel $h$ -toets: interlaboratoriumuitbijters

Er wordt aangenomen dat  $p$  laboratoria genaamd  $i$  ( $i = 1, 2 \dots p$ ) in  $n$ -voud een bepaling hebben uitgevoerd. De Mandel  $h$ -toets wordt gebruikt om een uitbijter te bepalen in een aantal laboratoriumgemiddelden (formule 1) ten opzichte van het gemiddelde van alle laboratoria (formule 4).

$$h_i = \frac{\bar{y}_i - \bar{y}}{\sqrt{\frac{1}{(p-1)} \sum_{i=1}^p (\bar{y}_i - \bar{y})^2}} \quad (\text{formule 10})$$

Indien de  $h$ -toets kleiner dan of gelijk is aan de 5 % kritische waarde (zie Tabel 4) dan wordt de meetwaarde als correct beoordeeld. Indien de toets groter dan de 5 % kritische waarde en kleiner dan de 1 % kritische waarde is, dan wordt de meetwaarde als een afdwaler (=straggler) beoordeeld. Indien de toets groter dan de 1 % kritische waarde is dan wordt de meetwaarde als een uitbijter beoordeeld (=outlier). In Tabel 4 staat een deel van de  $h$ - en  $k$ -waarden, overgenomen uit ISO 5725-2.

Tabel 4 Indicatoren voor de Mandel  $h$ - en  $k$ -toets op het 1 % en 5 % kritieke niveau

Aantal labs		$k$			$k$		
$p$	$h$ (1 %)	n=2 (1 %)	n=3 (1 %)		$h$ (5 %)	n=2 (5 %)	n=3 (5 %)
4	1,49	1,91	1,77		1,42	1,76	1,59
5	1,72	2,05	1,85		1,57	1,81	1,62
6	1,87	2,14	1,90		1,66	1,85	1,64
7	1,98	2,20	1,94		1,71	1,87	1,66
8	2,06	2,25	1,97		1,75	1,88	1,67
9	2,13	2,29	1,99		1,78	1,90	1,68
10	2,18	2,32	2,00		1,80	1,90	1,68

### 2.2.2 Mandel $k$ -toets: intralaboratorium uitbijters

Een laboratoriumgemiddelde kan goed overeenkomen met het gemiddelde van alle laboratoria, terwijl er toch sprake kan zijn van een grote spreiding in de  $n$ -voudige bepaling van dat laboratorium. De Mandel  $k$ -toets doet een uitspraak over de spreiding van laboratorium  $i$  ten opzichte van de som van de spreiding van alle laboratoria.

$$k_i = \frac{s_i \sqrt{p}}{\sqrt{\sum s_i^2}} \quad (\text{formule 11})$$

De beoordeling van de berekende  $k$ -toetswaarden gebeurt analoog aan de beschrijving bij de  $h$ -toetsen in de voorgaande paragraaf.

### 2.2.3 Grubbs' uitbijtertest voor enkelvoudige metingen

Indien het niet mogelijk is om een bepaling in meervoud uit te voeren, zoals bij het analyseren van de activiteit op filters, dan is een Mandel  $h$ - of  $k$ -toets niet geschikt. In dit geval kan bijvoorbeeld de test van Grubbs toegepast worden (zie onder).

Sorteer een dataset  $x_i$  ( $i = 1, 2, \dots, p$ ) in toenemende grootte, en stel vast of de grootste waarde  $x_p$  een uitbijter is met behulp van Grubbs'  $G_p$  waarde:

$$G_p = \frac{(x_p - \bar{x})}{s}$$

waarin

$$\bar{x} = \frac{1}{p} \sum_{i=1}^p x_i$$

en

$$s = \sqrt{\frac{1}{p-1} \sum_{i=1}^p (x_i - \bar{x})^2} \quad (\text{formule 12})$$

Precies dezelfde overwegingen gelden voor de berekende  $G_p$ -1 % en  $G_p$ -5 % waarden als voor de  $h$ - en  $k$ -toetswaarden in de Mandel-toets (zie voorgaande paragraaf). In Tabel 5 staat een deel van Grubbs' kritieke waarden, overgenomen uit ISO 5725-2.

*Tabel 5 Kritieke waarde voor de Grubbs' test op het 1 % en 5 % kritieke niveau*

Aantal data $p$	1 %	5 %
4	1,496	1,481
5	1,764	1,715
6	1,973	1,887
7	2,139	2,020
8	2,274	2,126
9	2,387	2,215
10	2,482	2,290



### 3. Concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627

#### 3.1 Voorwoord

Het principe van concept-NEN 5622, het meten van de totaal alfa-activiteit in een dikke laag, is niet veranderd. Gekozen is echter voor een dikke laag van minimaal  $200 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  terwijl in de versie van 1992 een dikke laag van minimaal  $100 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  werd voorgeschreven. Uit de recente literatuur, waar nu ook naar verwezen wordt in de normtekst, blijkt dat voor een aantal alfa-stralers een constant teltempo pas bij een dikke laag van  $> 150 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  waarneembaar is [14, 15, 16]. Het principe van de dikke-laagmethode is namelijk dat de laag zodanig dik moet zijn dat alfa-deeltjes die zich onderin het monster bevinden de detector niet zullen bereiken. Het aantal alfa's aan het oppervlak van het vaste telmonster dat de detector wel haalt, is dan onafhankelijk van de laagdikte en evenredig met de totale alfa-activiteit.

Het principe van concept-NEN 5627, het meten van de totaal bèta-activiteit gerelateerd aan de efficiëntie die bepaald is met een KCl-preparaat (met daarin het natuurlijk voorkomende isotoop  $^{40}\text{K}$ ), is eveneens niet veranderd. Er is echter de mogelijkheid open gelaten om, indien de identiteit van het nuclide bekend is (zoals bijvoorbeeld  $^{137}\text{Cs}$  of  $^{90}\text{Sr}$ ), in incidentele gevallen af te wijken van  $^{40}\text{K}$  als referentienuclide. Dit moet echter expliciet in de rapportage vermeld worden. De specifieke activiteit van KCl is na herberekening herzien tot  $14,8 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ . Tevens is de mogelijkheid om KCl van het RIVM te verkrijgen geschrapt. Het is immers mogelijk om bij diverse leveranciers KCl te bestellen met een voldoende hoge analytische zuiverheid.

#### 3.2 Materialen voor validatieonderzoek

De opzet is geweest om een grote hoeveelheid van diverse rondzendmonsters aan te maken en op homogeniteit te testen. Het intralaboratoriumonderzoek is door twee analisten uitgevoerd aan een deelmonster van de rondzendmonsters. De resterende deelmonsters zijn ongeveer een half jaar later gebruikt voor het interlaboratorium-validatieonderzoek.

Bij de aanmaak van rondzendmonsters is uitgegaan van de normtekst, waarbij de

- 
- 14 TM Semkow et al., Experimental investigation of mass efficiency curve for alpha radioactivity counting using a gas-proportional counter, *Applied Radiation and Isotopes*, 60 (2004), 879-886.
  - 15 TM Semkow et al., Modeling of alpha mass-efficiency curve. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 538 (2005), 790-800.
  - 16 HW Jeter, An extended-range method for gross alpha-/bèta-particle measurements in water samples. *Radioactivity and radiochemistry*, Vol.9, no. 1 (1998), 17-25.

hoeveelheden een factor 10 zijn opgeschaald. Het zo homogeen mogelijk aanmaken van poederachtige rondzendmonsters is goed uit te voeren in één grote batch. De praktische uitvoering is eenvoudiger en eventuele verschillen tussen onderlinge batches of problemen bij het homogeniseren van diverse batches worden voorkomen.

### 3.2.1 Radionuclidenoplossingen

Bij de Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB, Braunschweig, D) zijn  $^{241}\text{Am}$  en  $^{90}\text{Sr}$  bronnen besteld (zie Bijlage in paragraaf 3.6).

### 3.2.2 Aanmaak rondzendmonsters voor concept-NEN 5622

#### *Aanmaken referentiemonster met alfa-activiteit*

Bij het aanmaken van de  $\text{CaSO}_4$ -referentiemonsters is gebruik gemaakt van de normtekst van concept-NEN 5622, hoofdstuk 6. De procedure is zodanig opgeschaald dat er ongeveer acht deelmonsters uit gemaakt kunnen worden. Het resultaat van het aanmaken van rondzendmonsters voor de validatie van concept-NEN 5622 is een  $\text{CaSO}_4$ -poeder met een lage activiteit (A), een  $\text{CaSO}_4$ -poeder met een hoge activiteit (B), een poeder waar zowel alfa- als bèta-activiteit in gebracht is (E) en een blanco poeder (F). Voor een overzicht zie Tabel 6.

Tabel 6 Aangemaakte  $\text{CaSO}_4$ -rondzendmonsters met  $^{241}\text{Am}$

Concept-NEN 5622 Code	Referentiewaarde $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$
A	$2,76 \pm 0,06$
B	$54,1 \pm 1,2$
E	$55,8 \pm 1,2^*$
F	Blanco

\* Het monster E is met opzet met een hoge alfa-activiteit gekozen, om eventuele spill-over van alfa naar bèta meetbaar te maken.

### 3.2.3 Homogeniteitstest van rondzendmonsters voor concept-NEN 5622

Van de rondzendmonsters A, B en E zijn deelmonsters genomen van 4,0 g en deze zijn door middel van gammaspectrometrie gecontroleerd op homogeniteit. Gammaspectrometrie heeft als voordeel boven gasdoorstroomtelling dat niet uniforme korrelgrootte of luchtvochtigheid geen rol speelt. Bovendien is aangenomen dat acht deelmonsters van 4,0 g uit een totale partij van 32 g een voldoende representatieve test is op de homogeniteit. Een inhomogene verdeling binnen een deelmonster van 4,0 g is immers uitermate onwaarschijnlijk als er tussen de acht deelmonsters onderling een homogene verdeling wordt aangetroffen. De deelmonsters van 4,0 g zijn gemeten in een 50 ml telpot (Greiner) geometrie op een Ortec HPGe gamma spectrometrie opstelling met een N-type detector. Hier is gebruik gemaakt van een relatieve meting van de counts gemeten bij de 59,5 keV energielijn van  $^{241}\text{Am}$ . Er is geen exacte

kalibratie voor de geometrie  $\text{CaSO}_4$ -poeder uitgevoerd. Inclusief achtergrondcorrectie is de telfout maximaal 1,2 %. De resultaten van deze homogeniteitstest staan in Tabel 7.

*Tabel 7 Overzicht van homogeniteitstest voor de rondzendmonsters A, B, E*

Rondzendmonsters en totaal aantal counts bij 59,5 keV gemeten met gammaspectrometrie					
A1	9123 ± 1,2 %	B1	20494 ± 0,7 %	E1	21417 ± 0,7 %
A2	8881 ± 1,2 %	B2	20889 ± 0,7 %	E2	21233 ± 0,7 %
A3	9166 ± 1,2 %	B3	20915 ± 0,7 %	E3	21574 ± 0,7 %
A4	8749 ± 1,2 %	B4	21163 ± 0,7 %	E4	21849 ± 0,7 %
A5	8733 ± 1,2 %	B5	20821 ± 0,7 %	E5	21699 ± 0,7 %
A6	8964 ± 1,2 %	B6	21219 ± 0,7 %	E6	21267 ± 0,7 %
A7	9075 ± 1,2 %	B7	20870 ± 0,7 %	E7	21465 ± 0,7 %
A8	8983 ± 1,2 %	B8	20840 ± 0,7 %	E8	20986 ± 0,7 %
Gem. ± vc	8959 ± 1,8 %		20901 ± 1,0 %		21436 ± 1,3 %

vc = variatiecoëfficiënt [17]

Uit de bovenstaande tabel kan uit de geringe spreiding in de deelmonsters van 1,0 % -1,8 % geconcludeerd worden dat de variatiecoëfficiënt in de homogeniteit slechts iets hoger is dan de telfout.

### 3.2.4 Aanmaak rondzendmonsters voor concept-NEN 5627

Bij het aanmaken van de  $\text{CaSO}_4$ - plus KCl-rondzendmonsters is gebruik gemaakt van de normteksten van concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627. Het voorschrift is zodanig opgeschaald dat er ongeveer acht à negen deelmonsters uit gemaakt kunnen worden.

Het resultaat van het aanmaken van rondzendmonsters voor de validatie van concept-NEN 5627 is een  $\text{CaSO}_4$ -poeder met een lage  $^{90}\text{Sr}$  bèta-activiteit gemengd met KCl (C), een  $\text{CaSO}_4$ -poeder met een hoge  $^{90}\text{Sr}$  bèta-activiteit gemengd met KCl (D), een poeder waar zowel alfa- als bèta-activiteit in gebracht is (E), en een blanco poeder (F). Zie onderstaande Tabel 8.

*Tabel 8 Aangemaakte  $\text{CaSO}_4$ - + KCl-rondzendmonsters met  $^{40}\text{K}$  en  $^{90}\text{Sr}$*

Concept-NEN 5627 Code	Referentiewaarde $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	Bijdrage* $^{40}\text{K}$ $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	Bijdrage* $^{90}\text{Sr}$ (+ $^{90}\text{Y}$ ), $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$
C	12,1 ± 0,3	4,0	8,1
D	44,4 ± 1,0	6,4	38,0
E	4,5 ± 0,1	-	4,5
F	-	-	-

\* de bijdrage van de nucliden  $^{40}\text{K}$  en  $^{90}\text{Sr}$  +  $^{90}\text{Y}$  is van belang bij het bepalen van de juistheid.

### 3.2.5 Homogeniteitstest van rondzendmonsters voor concept-NEN 5627

Van elk van de rondzendmonsters C en D zijn negen deelmonsters van 4,0 g gemaakt en door middel van vloeistofscintillatie gecontroleerd op homogeniteit. Een steekproef van 100 mg uit elk deelmonster is ingewogen in een telflesje en zo goed mogelijk gesuspenderd in 2 ml demiwater, waarna 18 ml Ultima Gold LLT werd toegevoegd. De telflesjes zijn maximaal 200 minuten geteld in een kanaal van 0-1000 keV op een Packard 3100TR LSC teller.

De netto counts per minuut in het LSC-kanaal van 0-1000 keV zijn omgerekend naar  $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  waarbij gecorrigeerd is voor gewicht en een bèta-telefficiëntie van 100 % is aangenomen. Dit is voor zowel de bèta's van  $^{40}\text{K}$  als  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$  een plausibele aanname gezien de zeer geringe quenching bij 2 ml demiwater + 18 ml LSC-cocktail. De resultaten van deze homogeniteitstest staan in Tabel 9.

*Tabel 9 Overzicht van homogeniteitstest voor de rondzendmonsters C en D, bepaald met LSC in kanaal 0-1000 keV*

Rondzend-monsters	$\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1} *$	Rondzend-monsters	$\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1} *$
C1	$12,21 \pm 1,5 \text{ } \%^{*}$	D1	$44,20 \pm 1,1 \text{ } \%^{*}$
C2	$12,02 \pm 1,5 \text{ } \%$	D2	$44,30 \pm 1,1 \text{ } \%$
C3	$11,71 \pm 1,6 \text{ } \%$	D3	$42,99 \pm 1,2 \text{ } \%$
C4	$11,94 \pm 1,6 \text{ } \%$	D4	$43,24 \pm 1,1 \text{ } \%$
C5	$11,95 \pm 1,6 \text{ } \%$	D5	$42,97 \pm 1,2 \text{ } \%$
C6	$11,81 \pm 1,6 \text{ } \%$	D6	$43,85 \pm 1,1 \text{ } \%$
C7	$11,93 \pm 1,6 \text{ } \%$	D7	$41,59 \pm 1,2 \text{ } \%$
C8	$12,03 \pm 1,5 \text{ } \%$	D8	$45,79 \pm 1,1 \text{ } \%$
C9	$12,04 \pm 1,5 \text{ } \%$	D9	$43,84 \pm 1,1 \text{ } \%$
Gem. $\pm$ vc	$11,96 \pm 1,2 \text{ } \%$		$43,64 \pm 2,6 \text{ } \%$

\* Bij de negen waarnemingen is de telfout ( %) gegeven

Uit de bovenstaande tabel kan uit de geringe spreiding in de deelmonsters geconcludeerd worden dat de homogeniteit binnen 1,2 - 2,6 % ligt. Wat verder opvalt is dat de met LSC bepaalde totaal bèta-activiteit in het kanaal 0-1000 keV goed overeenkomt met de berekende en ingewogen activiteit voor  $^{40}\text{K}$  en  $^{90}\text{Sr}$  in Tabel 8.

### 3.2.6 Rondzendmonsters voor interlaboratorium-validatieonderzoek

Voor de aanmaak van de monstermaterialen A t/m F voor het interlaboratorium-validatieonderzoek wordt verwezen naar paragraaf 3.2.2 en 3.2.4.

Van de aangemaakte monstermaterialen A t/m F hebben de laboratoria genoemd in paragraaf 1.5 elk 4,0 g ontvangen. Een KCl-monster is meegestuurd om desgewenst als kalibratiebron te dienen voor de totaal bèta-efficiëntie in concept-NEN 5627.



### 3.2.7 Toegepaste detectietechniek en efficiënties

Voor de intralaboratorium-validatie van concept-NEN 5622 en 5627 is een Berthold LB 770 (2-inch) gasdoorstroomteller gebruikt. Deze teller heeft 10 telbuizen die gelijktijdig de totaal alfa (concept-NEN 5622) en totaal bèta-activiteit (concept-NEN 5627) kunnen meten. Van elke telbuis wordt apart de telefficiëntie vastgesteld door middel van een kalibratiestandaard, die qua monstergeometrie en kalibratienuclide een praktijkmonster zo dicht mogelijk benadert. Voor deze intralaboratorium-validatie hebben twee analisten volgens de normtekst van concept-NEN 5622 beiden een  $^{241}\text{Am-CaSO}_4$  kalibratiepoeder aangemaakt. Met dit poeder en met KCl zijn de 10 telbuizen gekalibreerd voor totaal alfa en totaal bèta metingen. Er zijn per nuclide in totaal 10 preparaten gemeten op de 10 telbuizen. De data in Tabel 10 zijn het gemiddelde en de variatiecoëfficiënt van die 10 metingen.

*Tabel 10 Telefficiënties voor totaal alfa- en totaal bèta-activiteit vastgesteld door 2 analisten ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )*

	Aantal	concept-NEN 5622		concept-NEN 5627	
		Totaal alfa	vc	Totaal bèta	vc
Analist 1	10	$0,0286 \pm 0,0013$	4,5 %	$0,413 \pm 0,004$	2,3 %
Analist 2	10	$0,0261 \pm 0,0013$	4,5 %	$0,411 \pm 0,006$	2,3 %

#### *Opmerking*

De totaal alfa-telefficiëntie is laag, 2,6 - 2,8 %, waardoor er lange telltijden nodig zijn om een voldoende lage detectiegrens te behalen. In het interlaboratorium-validatieonderzoek zijn totaal alfa-telefficiënties gerapporteerd van 2,5 – 4,2 %.

## 3.3 Intralaboratorium-validatie

Daar in de meetseries tegelijk totaal alfa- en totaal bèta-activiteit wordt gemeten is besloten om de intralaboratorium-validatie van concept-NEN 5622 en -5627 tegelijk te bespreken.

### 3.3.1 Herhaalbaarheid

In Tabel 11 staat een overzicht van de intralaboratoriumresultaten behaald door twee analisten in november 2004. De intralaboratorium-herhaalbaarheids-standaardafwijking is voor zowel totaal alfa- als totaal bèta-activiteit experimenteel bepaald.

*Tabel 11 Intralaboratorium-herhaalbaarheid. Overzicht van de gemiddelde totaal alfa-activiteit en totaal bèta-activiteit in de rondzendmonsters A, B, C, D en E*

Rondzend-monster	Analist	aantal	Concept-NEN 5622		Concept-NEN 5627	
			Totaal alfa* Bq·g <sup>-1</sup>	$\nu_{Cr}$	Totaal bèta* Bq·g <sup>-1</sup>	$\nu_{Cr}$
A	1	10	2,63 ± 0,12	4,7 %	-	
	2	10	2,80 ± 0,16	5,7 %	-	
B	1	10	50,2 ± 1,5	3,0 %	-	
	2	10	52,5 ± 2,0	3,9 %	-	
C	1	10	-		10,75 ± 0,12	1,1 %
	2	10	-		10,81 ± 0,19	1,7 %
D	1	10	-		38,0 ± 0,4	1,2 %
	2	10	-		37,9 ± 0,7	1,9 %
E	1	10	51,0 ± 1,5	2,9 %	5,11 ± 0,07	1,4 %
	2	10	53,1 ± 1,5	2,8 %	5,00 ± 0,11	2,2 %

\* de gegeven absolute onzekerheid is de standaardafwijking van het gemiddelde.

### 3.3.2 Reproduceerbaarheid

De intralaboratorium-reproduceerbaarheid ( $\nu_{C_{Rw}}$ ;  $w = \text{within}$ ) is bepaald op basis van 23 preparaten. De 20 preparaten die in november 2004 door 2 analisten aangemaakt zijn voor de bepaling van de herhaalbaarheid, en 3 preparaten die in augustus 2005 door een derde analist aangemaakt zijn voor het interlaboratorium-ringonderzoek. De intralaboratorium-reproduceerbaarheid is bepaald met formule 45 in NEN 7777. Zie Tabel 12.

*Tabel 12 Reproduceerbaarheid. Overzicht van de gemiddelde totaal alfa-activiteit en totaal bèta-activiteit in de rondzendmonsters A, B, C, D en E*

Rondzend-monster	aantal	Concept-NEN 5622		Concept-NEN 5627	
		Totaal $\alpha^*$ Bq·g <sup>-1</sup>	$\nu_{C_{Rw}}$	Totaal $\beta^*$ Bq·g <sup>-1</sup>	$\nu_{C_{Rw}}$
A	23	2,74 ± 0,19	6,8 %	-	
B	23	52,1 ± 2,7	5,2 %	-	
C	23	-		10,7 ± 0,2	2,2 %
D	23	-		38,0 ± 0,6	1,5 %
E	23	52,6 ± 2,2	4,3 %	5,07 ± 0,11	2,2 %

\* de gegeven absolute onzekerheid is de standaardafwijking van het gemiddelde

Vergelijking van de waarden in Tabel 11 en in Tabel 12 laat zien dat er slechts een gering verschil optreedt tussen de waarden gevonden onder herhaalbaarheidscondities en onder reproduceerbaarheidscondities. Voor zowel de alfa- als de bèta-bepalingen lijkt de

reproduceerbaarheid (Tabel 12 ) iets groter dan de herhaalbaarheid (Tabel 11).

### 3.3.3 Uitbijters en uitvallers

De herhaalbaarheid meetseries van 10 en de reproduceerbaarheid meetserie van 23 zijn met behulp van een Grubbs' outlier test op de mogelijke aanwezigheid van uitbijters (outliers) en uitvallers (stragglers) bekeken (paragraaf 2.2.3). Een uitbijter valt buiten het 1 %-criterium en een uitvaller valt tussen het 1 %- en 5 %-criterium.

#### Resultaat :

Er zijn geen uitbijters aangetroffen bij de herhaalbaarheidstest (paragraaf 3.3.1). Bij de reproduceerbaarheidstest (paragraaf 3.3.2) zijn een uitvaller (rondzendmonsters B) en 2 uitbijters (rondzendmonsters C en D) aangetroffen. Indien de betreffende uitbijters uit de serie van 23 worden weggelaten verbetert de intralaboratorium-reproduceerbaarheid-standaardafwijking enigszins. Zie Tabel 13.

*Tabel 13 Reproduceerbaarheid met en zonder uitbijter in de rondzendmonsters C, D*

Rondzend-monster	Aantal	Uitbijter met / zonder	Concept-NEN 5627	
			Totaal bèta* Bq·g <sup>-1</sup>	$VC_{RW}$
C	23	met	10,7 ± 0,2	2,2 %
	22	zonder	10,75 ± 0,18	1,7 %
D	23	met	38,0 ± 0,6	1,5 %
	22	zonder	38,0 ± 0,5	1,2 %

### 3.3.4 Juistheid

In de onderstaande Tabel 14 wordt de juistheid (of feitelijk beter: de **on**juistheid) uitgedrukt als het (relatieve) verschil met de referentiewaarde volgens formule 18 in NEN 7777. Hierbij is gebruik gemaakt van de gegevens in Tabel 6, Tabel 8, Tabel 12 en Tabel 13; dit houdt in dat voor de rondzendmonsters C en D de waarden zonder uitbijters zijn gebruikt.

*Tabel 14 Juistheid uitgedrukt als het relatieve verschil ten opzichte van de referentiewaarden voor de materialen A, B, C, D en E*

Rondzend-monster	Aantal	Concept-NEN 5622	
		totaal alfa	totaal bèta
A	23	-0,6 %	-
B	23	-3,7 %	-
C	22	-	-11,4 %
D	22	-	- 14,3 %
E	23	-5,7 %	13,1 %

De onjuistheid behaald in de totaal alfa-bepaling voor de materialen A, B en E komt overeen met een afwijking van maximaal 5,7 % van de referentiewaarde. Dit is gezien het doel van de bepaling acceptabel.

De onjuistheid in de totaal bèta-bepaling wordt beïnvloed door het feit dat het monster de nucliden  $^{40}\text{K}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  en  $^{90}\text{Y}$  bevat terwijl in het kalibratiemonster (KCl) alleen  $^{40}\text{K}$  in zit. De telefficiëntie voor  $^{40}\text{K}$  is hoger dan voor  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ . Dit komt doordat de bèta's van  $^{90}\text{Sr}$  met een maximumenergie van 546 keV (195 keV gemiddeld) wel degelijk zelfabsorptie in het monster ondervinden. Indien de formule in de Bijlage van concept-NEN 5627 voor de benadering van de bèta-zelfabsorptie, afhankelijk van bèta-energie en de laagdikte, toegepast wordt op  $^{40}\text{K}$  en  $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$  dan blijkt dat de efficiëntie voor  $^{40}\text{K}$  ongeveer 9 % hoger is. Het toepassen van de  $^{40}\text{K}$ -efficiëntie zal in dat geval systematisch een te lage activiteit opleveren.

In rondzendmonster E is er sprake van spill-over van het alfa- naar het bèta-kanaal. Daar er veel meer alfa-activiteit dan bèta-activiteit in het monster zit wordt er een aanzienlijk percentage van de alfa-activiteit onterecht als bèta-activiteit waargenomen; de juistheid is hier positief in plaats van negatief. Dit verschijnsel, alfa→bèta spill-over, is niet alleen nuclide afhankelijk, maar ook afhankelijk van de instellingen van de gasdoorstroomteller, hoogspanning en ROI-setting. In praktijk zal men echter vaak een hogere bèta-activiteit ten opzichte van alfa-activiteit in een monster aantreffen, zodat een accurate alfa→bèta spill-over correctie minder van belang is.

### 3.3.5 Aantoonbaarheidsgrens

De aantoonbaarheidsgrens, de laagst aantoonbare massieke totaal alfa- en totaal bèta-activiteit, is berekend volgens de formules in de normtekst. Er zijn 23 metingen aan blanco materiaal (monster F) gebruikt. De 20 preparaten die in november 2004 door 2 analisten gemeten zijn voor de bepaling van de herhaalbaarheid, en 3 preparaten die in augustus 2005 door een derde analist gemeten zijn voor het interlaboratorium-ringonderzoek. Zie Tabel 15.

*Tabel 15 Aantoonbaarheidsgrens voor totaal alfa- en totaal bèta-activiteit in  $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  ( $k=3$ )*

Rondzend-monster	Aantal	Concept-NEN 5622 totaal alfa	Concept-NEN 5627 totaal bèta
F	23	$0,20 \pm 0,03$	$0,046 \pm 0,004$

De onzekerheid in de bovenstaande tabel is de standaardafwijking (1s) in de serie van 23 metingen. Vanwege de lage teltempi bedroeg de teltijd 1800 minuten. De aantoonbaarheidsgrens voor totaal alfa-activiteit is veel hoger dan die voor totaal bèta-activiteit. De belangrijkste oorzaak is de lage telefficiëntie van circa 2,7 % voor totaal alfa-activiteit tegen circa 41 % voor totaal bèta-activiteit (Tabel 10).

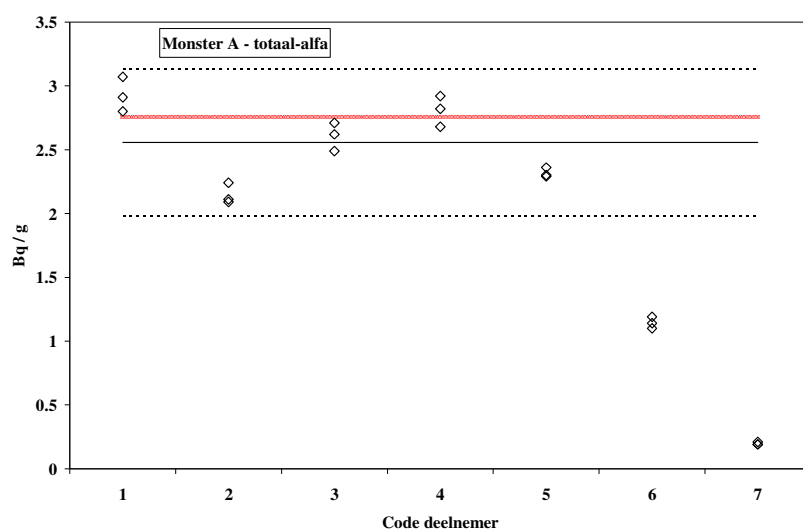
### 3.4 Interlaboratorium-validatie

Voor het vaststellen van de prestatiekenmerken in het interlaboratorium-validatieonderzoek worden de formules uit ISO 5725 [13] toegepast, zie ook hoofdstuk 2.

#### 3.4.1 Analyseresultaten

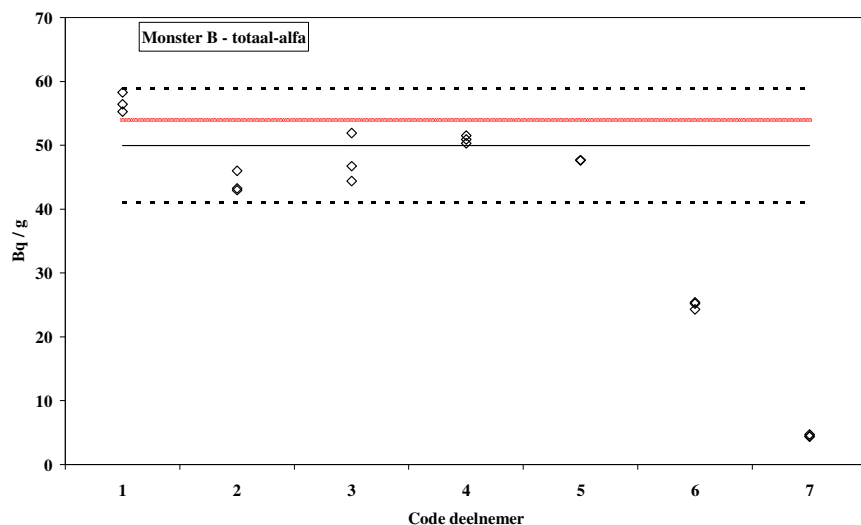
In de onderstaande Figuur 1, Figuur 2 en Figuur 3 staan de analyseresultaten voor totaal alfa-activiteit in de monstertypen A, B en E. De bijbehorende getallen staan in paragraaf 3.6.3 .

*concept-NEN 5622 – totaal alfa-activiteit*

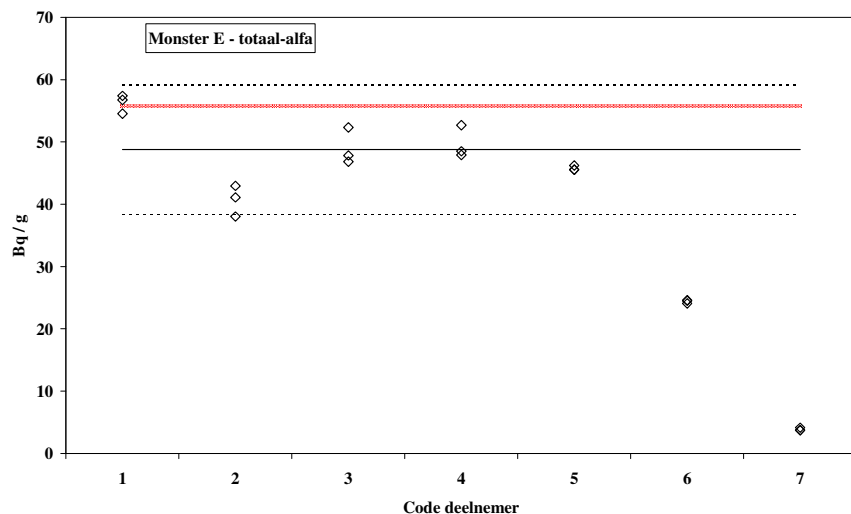


*Figuur 1 Interlaboratorium-validatie: resultaten voor totaal alfa-activiteit in monster A*

In iedere figuur is met een dikke doorgetrokken streep de referentiewaarde, en met een dunne doorgetrokken streep het gemiddelde van de deelnemers, bepaald zonder uitbijters, weergegeven met het  $\pm 2s$  interval in stippellijnen. Uit de drie figuren blijkt duidelijk dat de deelnemers 6 en 7 uitbijters zijn. De betreffende laboratoria hadden problemen met het vaststellen van een juiste efficiëntie. Zie daarvoor ook de volgende paragraaf.



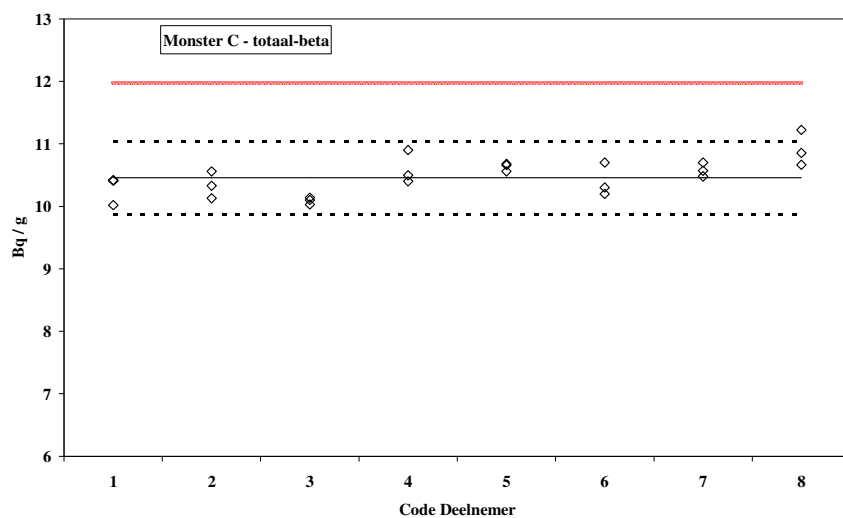
*Figuur 2 Interlaboratorium-validatie: resultaten voor totaal alfa-activiteit in monster B*



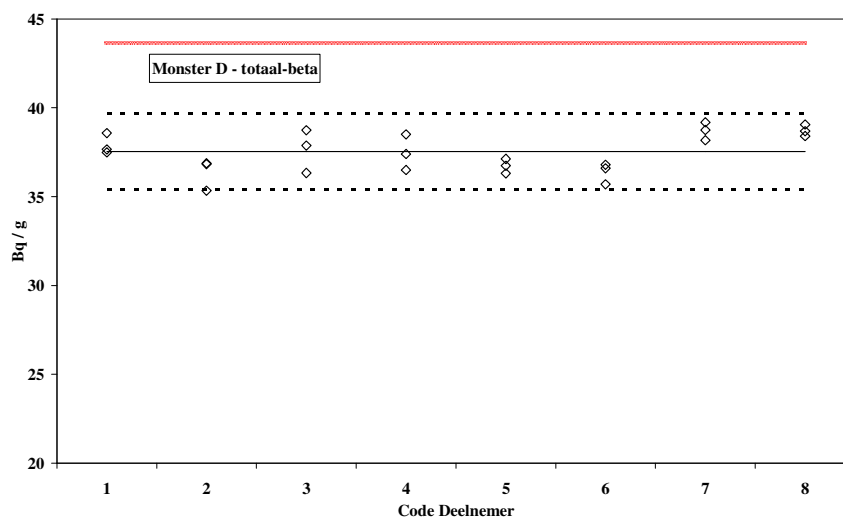
*Figuur 3 Interlaboratorium-validatie: resultaten voor totaal alfa-activiteit in monster E*

#### *Concept-NEN 5627 – totaal bèta*

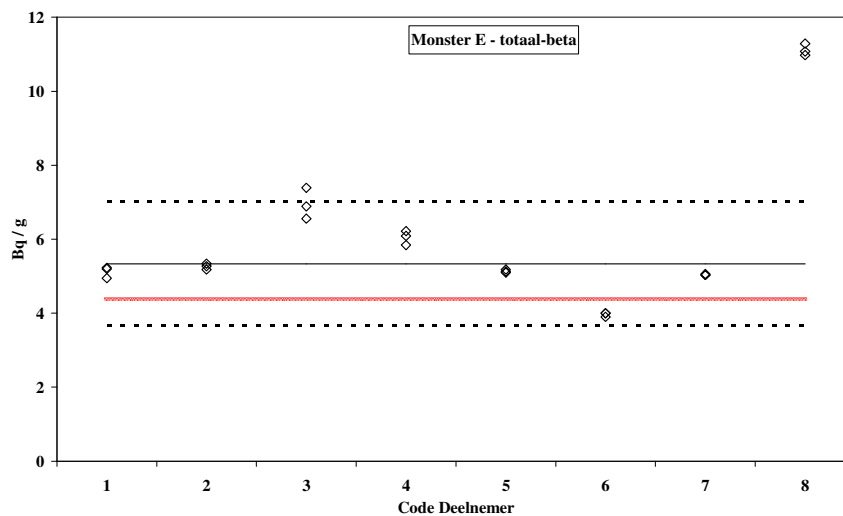
In Figuur 4, Figuur 5 en Figuur 6 is met een dikke doorgetrokken streep de referentiewaarde, en met een dunne doorgetrokken streep het gemiddelde van de deelnemers, bepaald zonder uitbijters, weergegeven met het  $\pm 2s$  interval in stippellijnen. Let hierbij op dat de y-as bij monster C en D niet bij 0 begint, maar hoger om de  $2s$  intervallen niet te klein te maken.



Figuur 4 Interlaboratorium-validatie: resultaten voor totaal bèta-activiteit in monster C



Figuur 5 Interlaboratorium-validatie: resultaten voor totaal bèta-activiteit in monster D



Figuur 6 Interlaboratorium-validatie: resultaten voor totaal bèta-activiteit in monster E

### 3.4.2 Uitbijters en uitvallers

In de totaal alfa-analysedata gegeven in paragraaf 3.6.3, Tabel 18 zijn de resultaten van laboratoria 6 en 7 verworpen op basis van een Mandel-uitbijtertest. De standaardafwijking van de drie gerapporteerde meetresultaten van deze laboratoria is klein ten opzichte van het verschil met de meetwaarden van de overige laboratoria. Het heeft dan ook geen zin om slechts één of twee van de drie meetwaarden te verwijderen; het laboratoriumgemiddelde verandert daardoor vrijwel niet. Nader overleg met de laboratoria 6 en 7 leverde op dat het aanmaken van een  $^{241}\text{Am}$  gespiket monstermateriaal op een D-lab niet mogelijk was. De alfa-efficiëntie is bepaald met een commercieel verkrijgbare  $^{241}\text{Am}$  bron met een zeer dunne laag. Dit leverde logischerwijs een (veel) te hoge alfa-efficiëntie waardoor de resultaten systematisch te laag uitvielen. Bij het interlaboratorium-validatieonderzoek van concept-NEN 5622 zijn dus de resultaten van 5 van de 7 laboratoria gebruikt voor het vaststellen van de prestatiekenmerken reproduceerbaarheid en juistheid.

In de totaal bèta-analysedata gegeven in paragraaf 3.6.3 is het resultaat van laboratorium 8 in monstertype E verworpen. Bij het interlaboratorium-validatieonderzoek van concept-NEN 5627 zijn dus de resultaten van 7 van de 8 laboratoria gebruikt voor het vaststellen van de prestatiekenmerken reproduceerbaarheid en juistheid. Hierbij is nog van de drie analysedata van laboratorium 3 in monstertype E de waarde 7,39 verworpen. Het laboratoriumgemiddelde  $y_i \pm s_i$  is bepaald op basis van de twee resterende data van laboratorium 3.

### 3.4.3 Reproduceerbaarheid

De interlaboratorium-reproduceerbaarheid is bepaald volgens formule 8 van hoofdstuk 2 op basis van de resultaten zonder uitbijters. De relatieve interlaboratorium-reproduceerbaarheid voor totaal alfa varieert tussen 10 en 13 %. Voor totaal bèta wordt een reproduceerbaarheid van 2,9-3,0 % gevonden voor de monsters C en D. Voor het monster E, waar de alfa→bètaspill-over niet verwaarloosbaar is, wordt een veel grotere relatieve reproduceerbaarheid gevonden. Het is duidelijk dat de alfa→bètaspill-over correctie, ofwel het ontbreken daarvan, bijdraagt aan een minder goed reproduceerbaar meetresultaat. Het corrigeren voor alfa→bètaspill-over valt echter buiten de normtekst.

In Tabel 16 worden de prestatiekenmerken getalsmatig samengevat.

### 3.4.4 Juistheid

De juistheid (of feitelijk beter: de **on**juistheid) wordt uitgedrukt als het (relatieve) verschil met de referentiewaarde (formule 9, hoofdstuk 2). De juistheid voor de totaal alfa-metingen ligt tussen -7,6 en -15,4 %. Er vindt dus een onderschatting van maximaal circa 15 % plaats.

Bij de totaal bèta-metingen wordt er een juistheid van -14 tot -16 % gevonden bij de monsters C en D. Een groot deel van deze afwijking kan verklaard worden door het kalibreren met KCl dat  $^{40}\text{K}$  bevat, en het meten van een preparaat dat  $^{40}\text{K}$  en  $^{90}\text{Sr}$  /  $^{90}\text{Y}$  bevat. Zie ook paragraaf 3.3.4.

De waarde van 16,5 % voor de juistheid bij monster E wordt verklaard door het optreden van



alfa→bètaspill-over. Zie ook paragraaf 3.3.4.

### 3.5 Prestatiekenmerken, conclusies en aanbevelingen

#### 3.5.1 Prestatiekenmerken

In Tabel 16 wordt een overzicht gegeven van de prestatiekenmerken behaald in het intralaboratorium-validatieonderzoek. Omdat het concept-NEN 5622 intralaboratorium-validatieonderzoek is uitgevoerd aan drie monstertypen (A, B en E) en het concept-NEN 5627 onderzoek ook aan drie monstertypen (C, D en E) zijn de prestatiekenmerken relatief gegeven, waarbij het bereik bepaald is door de uiterste waarden.

*Tabel 16 Overzicht van prestatiekenmerken in intralaboratorium-validatie*

Prestatiekenmerk	Symbool	Concept-NEN 5622 totaal alfa	Concept-NEN 5627 totaal bèta	Tabel
Herhaalbaarheid	$vc_r$ (%)	2,8 % tot 5,7 %	1,1 % tot 2,2 %	Tabel 11
Reproduceerbaarheid	$vc_{Rw}$ (%)	4,3 % tot 6,8 %	1,2 % tot 1,7 %	Tabel 12
Juistheid	%	-0,6 % tot -5,7 %	-14 % tot +13 %	Tabel 14
Aantoonbaarheidsgrens	$Bq \cdot g^{-1}$	0,20 ( $\pm 0,03$ )*	0,046 ( $\pm 0,004$ )*	Tabel 15

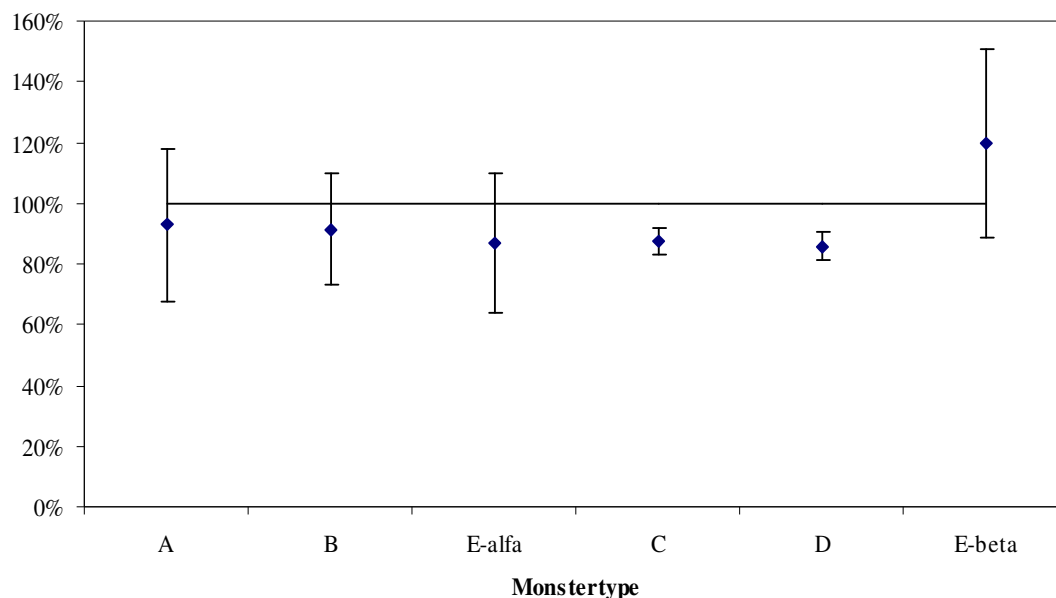
\* De bij de aantoonbaarheidsgrens gegeven waarde tussen haakjes betreft de spreiding in een aantal waarnemingen ( $n=22$  of 23).

In Tabel 17 staan de parameters van de interlaboratorium-herhaalbaarheid, reproduceerbaarheid en juistheid gegeven. Zie paragraaf 2.1 voor een verklaring van de symbolen en de formules 4 - 9.

*Tabel 17 Interlaboratorium-herhaalbaarheid, -reproduceerbaarheid en juistheid*

Monster type	n (aantal laboratoria)	$\bar{y}$ $Bq \cdot g^{-1}$	Totaal alfa-bepaling volgens concept-NEN 5622					
			$s_r$ $Bq \cdot g^{-1}$	$vc_r$	$s_R$ $Bq \cdot g^{-1}$	$vc_R$	d $Bq \cdot g^{-1}$	d (%)
A	5	2,56	0,10	4,0 %	0,34	13,2 %	-0,20	-7,6 %
B	5	49,39	2,01	4,1 %	5,00	10,1 %	-4,61	-9,3 %
E	5	48,28	2,19	4,5 %	5,96	12,4 %	-7,46	-15,4 %
Totaal bèta-bepaling volgens concept-NEN 5627								
C	8	10,48	0,21	2,0 %	0,30	2,9 %	-1,49	-14,3 %
D	8	37,48	0,75	2,0 %	1,13	3,0 %	-6,17	-16,4 %
E	7	5,26	0,12	2,4 %	0,82	15,7 %	0,87	16,5 %

Om de waarden uit de bovenstaande tabel inzichtelijker te maken zijn de belangrijkste gegevens samengevat in Figuur 7. Het betreft de laboratoriumgemiddelden relatief ten opzichte van de referentiewaarden met het bijbehorende  $\pm 2s_L$  interval. De (on-)juistheid kan hier door het verschil met de 100 %-lijn eenvoudig vastgesteld worden.



*Figuur 7 Laboratoriumgemiddelden voor de vijf monstertypen A t/m E, relatief ten opzichte van de referentiewaarde. De onzekerheid is tweemaal de standaardafwijking tussen laboratoria,  $s_L$  (paragraaf 2.1 ).*

### 3.5.2 Conclusies

Uit Tabel 17 en Figuur 7 kunnen de volgende conclusies getrokken worden:

1. De laboratoriumgemiddelden voor de concept-NEN 5622 resultaten in monstertype A, B en E zijn 7 tot 15 % lager dan de referentiewaarden.
2. De laboratoriumgemiddelden voor de concept-NEN 5627 resultaten in monstertype C, D zijn 14 % tot 16 % lager dan de referentiewaarden. Dit duidt op een systematische afwijking die veroorzaakt wordt doordat het monster de beide nucliden  $^{40}\text{K}$  en  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  bevat en het kalibratiemonster alleen maar  $^{40}\text{K}$  bevat. De telefficiënties van  $^{40}\text{K}$  en  $^{90}\text{Y}$  zijn vrijwel gelijk, maar de telefficiëntie van  $^{90}\text{Sr}$  is door zelfabsorptie veel lager dan die van  $^{40}\text{K}$ . Hierdoor wordt het analyseresultaat systematisch te laag (zie ook Tabel 14).
3. Het totaal bèta-gemiddelde in monstertype E is hier juist 16 % groter dan de referentiewaarde. Dit is verklaarbaar door de alfa- naar bèta-spill-over, die flink bijdraagt door de hoge totaal alfa-activiteitsconcentratie ten opzichte van de totaal bèta-activiteitsconcentratie in monstertype E.

4. De alfa- naar bèta-spill-over veroorzaakt in de totaal bèta-waarde bij monster E zowel het positieve (in plaats van negatieve) verschil met de referentiewaarde, als de veel grotere spreiding in het gemiddelde.
5. De intra- en interlaboratoriumjuistheid is bij de totaal alfa- en totaal bèta-bepalingen zoals beschreven in concept-NEN 5622 en 5627 in feite een ondergeschikte parameter. De methode wordt in praktijk hoofdzakelijk gebruikt als globale screening, bijvoorbeeld voor controle op het overschrijden van alarmdrempels.

### 3.5.3 Aanbevelingen

Er worden enkele wijzigingen voorgesteld in de teksten van ontwerp-NEN 5622 en 5627 (versies 14 maart 2005).

#### Ontwerp-NEN 5622

par.7.1.1 eerste alinea. Het  $\text{CaSO}_4$  lost slechts gedeeltelijk op en vormt een troebele melkig witte oplossing. Tekst aanpassen: ..., vul met warm gedemineraliseerd water aan tot 100 ml om het calciumsulfaat zo goed mogelijk op te lossen en meng de witte en troebele oplossing zo goed mogelijk.


par. 8.2.1 en 8.2.2 Volgens ontwerp-NEN 7779 wordt 'variatiecoëfficiënt' aangegeven met symbool 'vc'; in plaats van 'v'. Dit zal op diverse plekken aangepast moeten worden.


#### Ontwerp NEN 5627

par. 8.2.1 en 8.2.2 Volgens ontwerp-NEN 7779 wordt 'variatiecoëfficiënt' aangegeven met symbool 'vc'; in plaats van 'v'. Dit zal op diverse plekken aangepast moeten worden.

## 3.6 Bijlagen

### 3.6.1 Broncertificaat van $^{241}\text{Am}$

<b>Physikalisch-Technische Bundesanstalt</b>		
Seite 2 zum Kalibrierschein vom 18.03.2005, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-10834 Page 2 of calibration certificate of 18.03.2005, calibration mark: PTB-6.11-10834		
Gegenstand: Object:	Aktivitätsnormal Activity standard	
Typ: Type:	Wässrige Lösung in Glasampulle Aqueous solution in glass ampoule	
Kenn-Nummer: Serial number:	10834	
Radionuklid: Radionuclide:	Americium-241 Americium-241	
Chemische Zusammensetzung der wässrigen Lösung: Chemical composition of the aqueous solution:	$\text{HNO}_3$ 0,1 mol/L $\text{La}(\text{NO}_3)_3$ 35 mg/L	
Kalibrierverfahren: Method of calibration:	Die Lösung wurde durch definierte Mischung einer Ausgangslösung bekannter spezifischer Aktivität mit einem Verdünnungsmittel hergestellt. Die spezifische Aktivität der verwendeten Ausgangslösung wurde durch Messung der Photonenstrahlung mit einer $4\pi$ -Ionisationskammer bestimmt. Die $4\pi$ -Ionisationskammer ist eine Sekundärnormal-Messeinrichtung, kalibriert mit Aktivitätsnormalen der PTB.	

<b>Physikalisch-Technische Bundesanstalt</b>		
Seite 3 zum Kalibrierschein vom 18.03.2005, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-10834 Page 3 of calibration certificate of 18.03.2005, calibration mark: PTB-6.11-10834		
Lösungsmasse: Mass of solution:	$m = (2,0278 \pm 0,0017) \text{ g}$	
Spezifische Aktivität: Specific activity:	$a = (386 \pm 4) \text{ kBq/g}$	
Bezugszeitpunkt: Reference date:	1 Januar 2005, 00:00 Uhr MEZ 00:00 CET on 1 January 2005	
Messunsicherheit: Uncertainty of measurement:	Angegeben ist die erweiterte Messunsicherheit, die sich aus der Standardmessunsicherheit durch Multiplikation mit dem Erweiterungsfaktor $k = 2$ ergibt. Sie wurde gemäß dem "Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement" (ISO, 1995) ermittelt. Der Wert der Messgröße liegt im Regelfall mit einer Wahrscheinlichkeit von annähernd 95 % im zugeordneten Werteintervall.	

### 3.6.2 Broncertificaat van $^{90}\text{Sr}$

## Physikalisch-Technische Bundesanstalt



Seite 2 zum Kalibrierschein vom 20.10.2004, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2003-1122  
Page 2 of calibration certificate of 20.10.2004, calibration mark: PTB-6.11-2003-1122

Gegenstand:  
Object:

Aktivitätsnormal  
Activity standard

Typ:  
Type:

Wässrige Lösung in Glasampulle  
Aqueous solution in glass ampoule

Kenn-Nummer:  
Serial number:

2003-1122

Radionuklid:  
Radionuclide:

Strontium-90  
Strontium-90

Chemische Zusammensetzung  
der wässrigen Lösung:  
Chemical composition of the  
aqueous solution:

HCl	0,1 mol/L
SrCl <sub>2</sub>	30 mg/L
YCl <sub>3</sub>	30 mg/L

Kalibrierverfahren:  
Method of calibration:

Die Lösung wurde durch definierte Mischung einer Ausgangslösung bekannter spezifischer Aktivität mit einem Verdünnungsmittel hergestellt. Die spezifische Aktivität der verwendeten Ausgangslösung wurde durch Messung der Betastrahlung in einem Flüssigszintillations-Spektrometer nach der CIEMAT/NIST-Methode mit H-3 als Tracer bestimmt. Das Messverfahren wurde in *Computer Physics Communications* 36 (1985), S. 307 - 312 veröffentlicht.

## Physikalisch-Technische Bundesanstalt



Seite 3 zum Kalibrierschein vom 20.10.2004, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-2003-1122  
Page 3 of calibration certificate of 20.10.2004, calibration mark: PTB-6.11-2003-1122

Lösungsmasse:  
Mass of solution:

$m = (2,0191 \pm 0,0017) \text{ g}$

Spezifische Aktivität:  
Specific activity:

$a = (38,7 \pm 0,6) \text{ kBq/g}$

Bezugszeitpunkt:  
Reference date:

1. Januar 2005, 00:00 Uhr MEZ  
00:00 CET on 1 January 2005

Messunsicherheit:  
Uncertainty of measurement:

Angegeben ist die erweiterte Messunsicherheit, die sich aus der Standardmessunsicherheit durch Multiplikation mit dem Erweiterungsfaktor  $k = 2$  ergibt. Sie wurde gemäß dem "Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement" (ISO, 1995) ermittelt. Der Wert der Messgröße liegt im Regelfall mit einer Wahrscheinlichkeit von annähernd 95 % im zugeordneten Werteintervall.

### 3.6.3 Analyseresultaten concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627

In Tabel 18 staan de analyseresultaten voor de interlaboratorium-validatie van concept-NEN 5622. Alle data zijn arbitrair afgerond op 2 decimalen.

*Tabel 18 Totaal alfa-analyseresultaten bij interlaboratorium-validatie concept-NEN 5622*

Laboratorium <i>p</i>	Monstertype A $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	Telfout	Monstertype B $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	Telfout	Monstertype E $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$	Telfout	Alfa efficiëntie
1	3,07	5,49 %	56,41	1,63 %	56,75	1,17 %	2,22 %
	2,80	5,40 %	55,27	1,58 %	54,53	1,12 %	2,40 %
	2,91	5,57 %	58,27	1,61 %	57,38	1,14 %	2,21 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	$2,93 \pm 0,14$		$56,65 \pm 1,51$		$56,22 \pm 1,50$		
2	2,24	2,10 %	45,99	0,70 %	42,95	0,80 %	3,16 %
	2,09	2,20 %	43,25	0,80 %	41,10	0,80 %	3,16 %
	2,11	2,20 %	42,95	0,80 %	38,03	0,80 %	3,16 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	$2,15 \pm 0,08$		$44,06 \pm 1,68$		$40,69 \pm 2,49$		
3	2,71	3,70 %	51,90	2,46 %	52,34	2,46 %	4,21 %
	2,49	3,82 %	46,73	2,46 %	47,84	2,46 %	4,21 %
	2,62	3,72 %	44,38	2,47 %	46,84	2,47 %	4,21 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	$2,61 \pm 0,11$		$47,67 \pm 3,85$		$49,01 \pm 2,93$		
4	2,92	6,80 %	50,30	2,90 %	52,70	2,90 %	2,50 %
	2,82	6,90 %	50,90	2,90 %	47,90	3,00 %	2,50 %
	2,68	7,00 %	51,50	2,90 %	48,50	3,00 %	2,50 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	$2,81 \pm 0,12$		$50,90 \pm 0,60$		$49,70 \pm 2,62$		
5	2,29	2,31 %	47,68	0,85 %	45,55	0,56 %	2,93 %
	2,36	2,28 %	47,64	0,86 %	45,56	0,57 %	2,98 %
	2,30	2,32 %	47,62	0,86 %	46,21	0,57 %	2,91 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	$2,32 \pm 0,04$		$47,65 \pm 0,03$		$45,77 \pm 0,38$		
6*	1,14	6,70 %	25,40	1,40 %	24,50	1,50 %	46,20 %
	1,10	7,10 %	25,20	1,40 %	24,60	1,50 %	46,20 %
	1,19	6,60 %	24,30	1,50 %	24,10	1,50 %	46,20 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	$(1,14 \pm 0,05)^*$		$(24,97 \pm 0,59)^*$		$(24,40 \pm 0,26)^*$		
7*	0,21	3,42 %	4,72	0,87 %	4,13	0,91 %	21,34 %
	0,19	3,59 %	4,45	0,88 %	3,71	0,94 %	21,34 %
	0,19	3,56 %	4,34	0,89 %	3,72	0,94 %	21,34 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	$(0,20 \pm 0,01)^*$		$(4,50 \pm 0,20)^*$		$(3,85 \pm 0,24)^*$		

<sup>#</sup> Het laboratoriumgemiddelde  $\pm 1s$  is berekend volgens de formules in paragraaf 2.1.

\* De gerapporteerde analyseresultaten zijn na een uitbijttest verworpen. Zie paragraaf 3.4.2.

In Tabel 19 staan de analyseresultaten voor de interlaboratorium-validatie van concept-NEN 5627. Alle data zijn arbitrair afgerond op 2 decimalen.

*Tabel 19 Totaal bèta analyseresultaten bij interlaboratorium-validatie concept-NEN 5627*

Laboratorium <i>p</i>	Monstertype C Bq·g <sup>-1</sup>	Telfout	Monstertype D Bq·g <sup>-1</sup>	Telfout	Monstertype E Bq·g <sup>-1</sup>	Telfout	Bèta efficiëntie
1	10,42	1,08 %	37,66	0,98 %	5,23	0,96 %	39,76 %
	10,02	1,07 %	37,49	0,95 %	5,20	0,92 %	40,74 %
	10,41	1,06 %	38,57	0,95 %	4,95	0,95 %	40,17 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	10,28 ± 0,23		37,91 ± 0,58		5,13 ± 0,15		
2	10,56	0,70 %	36,83	0,40 %	5,27	0,60 %	40,50 %
	10,33	0,70 %	36,88	0,40 %	5,34	0,60 %	40,50 %
	10,13	0,70 %	35,33	0,40 %	5,18	0,60 %	40,50 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	10,34 ± 0,22		36,35 ± 0,88		5,26 ± 0,08		
3	10,03	2,75 %	36,33	2,25 %	6,89	3,24 %	25,53 %
	10,14	2,74 %	37,88	2,23 %	6,56	3,36 %	22,51 %
	10,10	2,75 %	38,74	2,24 %	7,39*	3,19 %	23,62 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	10,09 ± 0,06		37,65 ± 1,22		6,73 ± 0,23		
4	10,40	1,80 %	37,40	1,00 %	5,84	3,50 %	36,43 %
	10,50	1,80 %	38,50	1,00 %	6,22	3,30 %	36,43 %
	10,90	1,80 %	36,50	1,00 %	6,09	3,30 %	36,43 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	10,60 ± 0,26		37,47 ± 1,00		6,05 ± 0,19		
5	10,68	0,72 %	36,31	0,88 %	5,13	0,45 %	38,00 %
	10,66	0,71 %	36,74	0,87 %	5,18	0,47 %	39,03 %
	10,56	0,72 %	37,12	0,88 %	5,10	0,47 %	37,97 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	10,63 ± 0,06		36,72 ± 0,41		5,14 ± 0,04		
6	10,20	1,10 %	35,70	0,90 %	4,00	1,60 %	66,20 %
	10,30	0,70 %	36,60	0,90 %	3,90	1,60 %	66,20 %
	10,70	1,10 %	36,80	0,90 %	4,00	1,60 %	66,20 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	10,40 ± 0,26		36,37 ± 0,59		3,97 ± 0,06		
7	10,70	1,34 %	39,18	1,26 %	5,03	1,39 %	37,08 %
	10,57	1,34 %	38,17	1,26 %	5,06	1,38 %	37,08 %
	10,48	1,34 %	38,75	1,26 %	5,03	1,38 %	37,08 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	10,58 ± 0,11		38,70 ± 0,51		5,04 ± 0,02		
8	10,66	2,26 %	39,06	1,20 %	11,08*	2,22 %	28,10 %
	10,85	2,24 %	38,41	1,21 %	10,98*	2,23 %	28,10 %
	11,22	2,20 %	38,69	1,20 %	11,29*	2,20 %	28,10 %
Labgemiddelde <sup>#</sup>	10,91 ± 0,28		38,72 ± 0,33		(11,12 ± 0,16)*		

<sup>#</sup> Het laboratoriumgemiddelde ± 1s is berekend volgens de formules in paragraaf 2.1.

- De gerapporteerde analyseresultaten zijn na een uitbijtertest verworpen. Zie paragraaf 3.4.2





## 4. Concept-NEN 5636

### 4.1 Voorwoord

In dit hoofdstuk wordt de validatie van concept-NEN 5636 beschreven. Concept-NEN 5636 is de voornorm voor de bepaling van de kunstmatige totaal alfa- en bèta-activiteit alsmede gammaspectrometrie van luchtfilters. Aangezien de gammaspectrometrie conform NEN 5623 moet plaatsvinden en deze norm al eerder gevalideerd is, beperkt dit project zich tot de bepaling van de alfa- en bèta-activiteit op luchtfilters.

In dit hoofdstuk worden achtereenvolgens beschreven, de gebruikte materialen en hulpmiddelen, de aanmaak en de homogeniteitstesten van de filters voor het validatieonderzoek, de resultaten van het intralaboratorium onderzoek en de resultaten van het interlaboratoriumonderzoek.

### 4.2 Overzicht van uitgangsmaterialen en hulpmiddelen

#### 4.2.1 Filters

De membraanfilters (Schleicher & Schuell, NC10, ref: 10402014, Lot: EI0891-1) zijn gemaakt van cellulosenitraat. De filters hebben een diameter van 50 mm en een poriegrootte van 0,1  $\mu\text{m}$ .

De glasvezelfilters (Schleicher & Schuell, No.10, ref: 370302, Lot: X27301) hebben een diameter van 50 mm en zijn identiek aan de filters die in de luchtmonsteringsapparatuur van de Waakvlaminstituten worden gebruikt.

#### 4.2.2 Radionuclidenoplossingen en kalibratiebronnen

Voor dit project zijn via Isotrak bij Amersham twee gecertificeerde radionuclidenoplossingen aangeschaft. Een  $^{241}\text{Am}$ -oplossing voor het spiken van de filters met alfa-activiteit en een  $^{137}\text{Cs}$ -oplossing voor het spiken van filters met bèta-activiteit. De relevante gegevens van de beide oplossingen worden in paragraaf 4.7 gegeven.

Via Isotrak zijn ook twee standaardbronnen aangeschaft. Een  $^{241}\text{Am}$ -bron voor het kalibreren van de alfa-metingen en een  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -bron voor het kalibreren van de bèta-metingen. Beide bronnen bestaan uit een cirkelvormig aluminium plaatje met een diameter van 60 mm en een dikte van 3 mm. Het actieve oppervlak heeft een diameter van 50 mm. Conform concept-NEN 5636 zijn de actieve oppervlakken 'oneindig dun'. De activiteit van de bronnen is respectievelijk  $(145 \pm 2)$  Bq voor de  $^{241}\text{Am}$ -bron en  $(179 \pm 4)$  Bq voor de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -bron (1SD, referentiedatum: 12.00 op 6-4-2005, GMT). De andere relevante gegevens voor deze bronnen

worden in paragraaf 4.7 gegeven.

#### 4.2.3 Verdunningen van de radionuclide-oplossingen

Van de twee gecertificeerde uitgangso oplossingen zijn vijf verdunningen gemaakt. Een overzicht van de codes en specifieke activiteiten van deze verdunningen wordt gegeven in Tabel 20.

*Tabel 20 Specifieke activiteiten van de verdunningen (12.00 GMT 1-1-2005). Onzekerheden betreffen de 1s waarde*

Verdunningscode	<sup>137</sup> Cs	<sup>241</sup> Am
	Bq·g <sup>-1</sup>	Bq·g <sup>-1</sup>
AM1	0	25,12 ± 0,07
AM2	0	12,58 ± 0,03
CS1	187,4 ± 0,8	0
CS2	46,81 ± 0,21	0
AMCE	9,36 ± 0,04	6,29 ± 0,02

#### 4.2.4 Containers

##### Containers voor vloeistof

Voor het aanmaken en bewaren van de radionuclide-oplossingen zijn PE flessen van 1 l met dubbelafdichtende dop gebruikt.

##### Containers voor filters

Voor het indampen van de radionuclide-oplossingen op de filters en voor het bewaren en versturen van de filters zijn ronde 40 ml PE-containers (ronddoos, Rubox, art. nr. 40404-0101) gebruikt met een diameter van 55 mm.

#### 4.2.5 Stralingsmeetapparatuur

##### Gammametingen

Voor de gammametingen is gebruik gemaakt van een tweetal HPGe-gammadetectoren verder te onderscheiden via de codes GDET1 en GDET2. Deze detectoren zijn EG&G-Ortec HPGe-detectoren die opgesteld staan in een lage achtergrond behuizing bestaande uit een kasteel van lage achtergrond lood (10 cm) waarvan de wanden inwendig bedekt zijn met 2 mm koper. Het koper dient ter absorptie van laag energetische fotonen afkomstig van röntgen-fluorescentie van het lood. GDET1 heeft een kristal met een diameter van 60,4 mm en een hoogte van 78,3 mm en wordt gebruikt voor het energiebereik tot 3 MeV. Het kristal van GDET2 heeft een diameter van 52,0 mm en een hoogte van 204 mm. GDET2 wordt in het energiebereik tot 700 keV gebruikt.

#### 4.2.6 Alfa- en bèta-metingen

De alfa- en bèta-metingen zijn gedaan met een gasdoorstroomteller (FAG FHT 770 S). Deze teller is afgeschermd met 1,5 cm lood en verder uitgerust met een actieve veto voor kosmische straling. Het gebruikte telgas is Ar/CH<sub>4</sub> en de opstelling kan in de alfa- en alfa+bèta-mode gebruikt worden. In alle gevallen waarin zowel alfa- en bèta-activiteit op het preparaat is te verwachten is in beide modes gemeten. Het bèta-sigitaal is in die gevallen uit het verschil van de metingen in de alfa- en alfa+bèta-mode verkregen. In alle relevante gevallen zijn achtergrondcorrecties toegepast. Hiervoor zijn steeds de meest recent gemeten achtergronden gebruikt. Alle metingen aan filters zijn gedaan in de standaardgeometrie met het filter op de bodem van het telbakje. In Tabel 21 wordt een overzicht gegeven van de typische achtergrondtelsnelheden van de gasdoorstroomteller (teltijden 3600 s).

*Tabel 21 Achtergrondtelsnelheid ( $s^{-1}$ ) van de gasdoorstroomteller voor de twee gebruikte modes en voor verschillende blanco situaties. Onzekerheden betreffen 1 s (telfout).*

Blanco situatie	alfa-mode	alfa+bèta-mode
Geen telbakje	0,005 ± 0,001	0,146 ± 0,006
Leeg telbakje	0,002 ± 0,001	0,167 ± 0,007
Telbakje met glasvezelfilter	0,005 ± 0,001	0,173 ± 0,007
Telbakje met membraanfilter	0,002 ± 0,001	0,200 ± 0,007

De gasdoorstroomteller is gekalibreerd met de in paragraaf 4.2.2 beschreven standaardbronnen op basis van <sup>241</sup>Am en <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y. Alle alfa- en bèta-tellingen aan de filters zijn gedaan met de filters op de bodem van een telbakje. Deze geometrie wijkt iets af van de geometrie waarin de standaardbronnen gemeten zijn omdat de actieve laag van deze bronnen zich 3 mm dicht bij de detector bevindt dan de filters ten gevolge van de dikte van de bronnen (die 3 mm is). Om het telrendement in de positie van het filter te bepalen is de bovenkant van met AM1- en CS1-oplossing beladen filters in beide posities gemeten. Hieruit zijn correctiefactoren berekend voor omrekening naar de positie van de filtermetingen. Typische waarden voor het telrendementen van de gasdoorstroomteller voor alfa- en bèta-tellingen aan filters zijn 0,228 (alfa) en 0,392 (bèta). Deze waarden zijn afgeleid uit metingen met de beide bronnen waarbij de correctie naar de positie van de filtermetingen is toegepast.

### 4.3 Materialen voor validatieonderzoek

#### 4.3.1 Motivatie van gemaakte keuzes

In concept-NEN 5636 worden twee soorten filters genoemd, namelijk glasvezelfilters en membraanfilters. In dit validatieonderzoek is er daarom voor gekozen om beide filtersoorten te gebruiken. Volgens concept-NEN 5636 worden filters via luchtmonstering beladen en het ligt voor de hand volgens deze methode aangemaakte filters voor het validatieonderzoek te

gebruiken. Dit is echter complex en kostbaar en daarom is voor een belading van de filters via radionuclide-oplossingen gekozen.

Indien een filter via luchtaanzuiging beladen wordt dan zal naar verwachting een groot gedeelte van de activiteit aan het oppervlak van het filter zitten. Bij belading via radionuclide vloeistoffen zal de vloeistof het filter binnendringen en de activiteit wordt door het filter verspreid. Dit heeft als consequentie dat, vooral voor alfa-stralers, zelfabsorptie in het filter een rol gaat spelen. De in de norm voorgeschreven kalibratie via een 'oneindig dunne' oppervlaktebron zal de werkelijkheid minder goed beschrijven en ten gevolge van de zelfabsorptie zal in het algemeen een onderschatting van de werkelijke activiteit optreden. Dit betekent dat de juistheid van de methode minder goed geschat kan worden. Voor de herhaalbaarheid en de reproduceerbaarheid heeft dit echter geen consequenties omdat in alle gevallen dezelfde systematische afwijking zal optreden.

#### **4.3.2 Aanmaak filters voor het validatieonderzoek**

Voor het beladen van de filters via radionuclide-oplossingen zijn de filters geplaatst in een kunststof ronddoos. Hierna is op de filters een zodanige hoeveelheid radionuclide-oplossing gepipetteerd dat het filter geheel door de vloeistof bedekt was. De filters zijn daarna overnacht in een zuurkast bewaard zodat al een gedeelte van de vloeistof verdampen kon en vervolgens gedurende 4 uur in een oven gezet en verder gedroogd bij 50 °C.

Er zijn 22 glasvezelfilters (codes AMCE-G-004 tot 025) en 22 membraanfilters (codes AMCE-M-004 tot 025) beladen met de AMCE-oplossing volgens boven beschreven procedure. De hoeveelheid AMCE-oplossing die op de filters gepipetteerd is werd per filter nauwkeurig gewogen en was gemiddeld voor de glasvezelfilters ( $4,951 \pm 0,009$  g;  $n=22$ ) en voor de membraanfilters ( $4,932 \pm 0,009$  g;  $n=22$ ).

#### **4.3.3 Homogeniteitstesten**

Na het drogen zijn alle filters in het doosje waarin ze beladen zijn gemeten op gammadetector GDET1 (M-serie filters) of GDET2 (G-serie filters). Hierna zijn de filters uit de doosjes verwijderd en is er een gammameting gedaan aan het lege doosje op dezelfde detector die voor de meting van filter en doosje was gebruikt. Bij het verwijderen van filter AMCE-G-007 bleek dat er tijdens het beladen abusievelijk twee filters in het doosje gedaan zijn. Om deze reden zijn er aan dit doosje en deze filters verder geen metingen meer gedaan en is de code uit de verdere dataverwerking verwijderd. Uit de ratio tussen de telsnelheden van de fotopieken van  $^{241}\text{Am}$  (59,5 keV) en  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV) bleek dat de restactiviteit in de doosjes in alle gevallen kleiner is dan ongeveer 2,5 %. Voor de glasvezelfilters is dit zelfs kleiner dan 1 %. Het bleek dat de spreiding in de counts van de fotopiek van  $^{137}\text{Cs}$  voor beide filtertypes minder dan 5 % is. Voor de membraanfilters is de afwijking op basis van de fotopiek van  $^{241}\text{Am}$  net iets hoger. Om binnen een 5 % marge voor homogeniteit te blijven is filter AMCE-M-013 uit de serie verwijderd. De homogeniteit op basis van de fotopiek van  $^{241}\text{Am}$  is dan 4,8 % in plaats van 5 %. Voor de overgebleven filters zijn de voor restactiviteit in de doosjes

gecorrigeerde activiteiten gegeven in Tabel 22.

*Tabel 22 Overzicht van de voor restactiviteit gecorrigeerde activiteit van  $^{241}\text{Am}$  en  $^{137}\text{Cs}$  op de filters die aangemaakt zijn voor de intra- en interlaboratorium-validatie.*

Glasvezelfilters			Membraanfilters		
Filtercode	$^{241}\text{Am}$ (Bq)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq)	Filtercode	$^{241}\text{Am}$ (Bq)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq)
AMCE-G-004	$30,98 \pm 0,08$	$46,3 \pm 0,2$	AMCE-M-004	$30,68 \pm 0,08$	$45,6 \pm 0,2$
AMCE-G-005	$31,07 \pm 0,08$	$46,2 \pm 0,2$	AMCE-M-005	$30,62 \pm 0,08$	$45,4 \pm 0,2$
AMCE-G-006	$30,88 \pm 0,08$	$46,2 \pm 0,2$	AMCE-M-006	$31,05 \pm 0,08$	$45,6 \pm 0,2$
AMCE-G-008	$31,08 \pm 0,08$	$46,2 \pm 0,2$	AMCE-M-007	$31,06 \pm 0,08$	$45,6 \pm 0,2$
AMCE-G-009	$31,16 \pm 0,08$	$46,4 \pm 0,2$	AMCE-M-008	$31,03 \pm 0,08$	$45,5 \pm 0,2$
AMCE-G-010	$31,10 \pm 0,08$	$46,4 \pm 0,2$	AMCE-M-009	$31,08 \pm 0,08$	$45,3 \pm 0,2$
AMCE-G-011	$30,95 \pm 0,08$	$46,4 \pm 0,2$	AMCE-M-010	$30,99 \pm 0,08$	$44,9 \pm 0,2$
AMCE-G-012	$31,09 \pm 0,08$	$46,4 \pm 0,2$	AMCE-M-011	$30,44 \pm 0,08$	$45,4 \pm 0,2$
AMCE-G-013	$30,97 \pm 0,08$	$46,2 \pm 0,2$	AMCE-M-012	$31,13 \pm 0,08$	$45,6 \pm 0,2$
AMCE-G-014	$30,90 \pm 0,08$	$46,3 \pm 0,2$	AMCE-M-014	$31,16 \pm 0,08$	$46,4 \pm 0,2$
AMCE-G-015	$31,05 \pm 0,08$	$46,4 \pm 0,2$	AMCE-M-015	$30,97 \pm 0,08$	$45,6 \pm 0,2$
AMCE-G-016	$31,06 \pm 0,08$	$46,3 \pm 0,2$	AMCE-M-016	$31,03 \pm 0,08$	$46,0 \pm 0,2$
AMCE-G-017	$30,88 \pm 0,08$	$46,3 \pm 0,2$	AMCE-M-017	$31,02 \pm 0,08$	$46,1 \pm 0,2$
AMCE-G-018	$31,09 \pm 0,08$	$46,4 \pm 0,2$	AMCE-M-018	$31,03 \pm 0,08$	$45,7 \pm 0,2$
AMCE-G-019	$30,99 \pm 0,08$	$46,3 \pm 0,2$	AMCE-M-019	$31,04 \pm 0,08$	$45,4 \pm 0,2$
AMCE-G-020	$31,03 \pm 0,08$	$46,3 \pm 0,2$	AMCE-M-020	$31,05 \pm 0,08$	$45,7 \pm 0,2$
AMCE-G-021	$31,13 \pm 0,08$	$46,1 \pm 0,2$	AMCE-M-021	$31,04 \pm 0,08$	$45,8 \pm 0,2$
AMCE-G-022	$31,02 \pm 0,08$	$46,2 \pm 0,2$	AMCE-M-022	$30,94 \pm 0,08$	$45,2 \pm 0,2$
AMCE-G-023	$30,90 \pm 0,08$	$46,0 \pm 0,2$	AMCE-M-023	$30,37 \pm 0,08$	$45,2 \pm 0,2$
AMCE-G-024	$31,00 \pm 0,08$	$46,3 \pm 0,2$	AMCE-M-024	$31,02 \pm 0,08$	$46,1 \pm 0,2$
AMCE-G-025	$31,15 \pm 0,08$	$46,4 \pm 0,2$	AMCE-M-025	$30,98 \pm 0,08$	$45,6 \pm 0,2$
Gem $\pm$ vc	$31,02 \pm 0,3 \%$	$46,3 \pm 0,24 \%$		$30,9 \pm 0,65 \%$	$45,6 \pm 0,88 \%$

In Tabel 23 worden de gemiddelde telsnelheden per Bq voor de overblijvende 21 filters per filtertype gegeven. De spreiding in deze telsnelheden is groter dan de onzekerheid die geïntroduceerd wordt door de massabepalingen (zie Tabel 22). Deze extra spreiding is zeer waarschijnlijk het gevolg van kleine verschillen in geometrie (bobbels en deukjes in de beladen filters) en/of een niet geheel homogene verdeling van de activiteit per filter.

*Tabel 23 Overzicht van de gemiddelde telsnelheden (gamma-meting) per Bq voor de twee groepen filters. Onzekerheden zijn  $s$  van het gemiddelde. Tevens is de variatiecoëfficiënt (%) voor de filtergroepen gegeven,  $n$  is het aantal filters per groep.*

Filtertype	$n$	$^{241}\text{Am}$ ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )	vc (%)	$^{137}\text{Cs}$ ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )	vc (%)
Glasvezel	21	$0,0730 \pm 0,003$	3,5	$0,0176 \pm 0,0005$	3,4
Membraan	21	$0,0204 \pm 0,0010$	4,8	$0,0495 \pm 0,0005$	3,6

Aan deze filters zijn tevens alfa- en bèta-tellingen gedaan. Om eventuele verschillen tussen belading van boven- en onderkant aan te tonen zijn beide kanten van de filters geteld. De resultaten hiervan zijn samengevat in Tabel 24 en Tabel 25. Voor de alfa-tellingen van de boven- en onderkant is de relatieve standaardafwijking (Tabel 24) in alle gevallen significant groter dan 5 %. Kennelijk is de verdeling van de radionucliden over boven- en onderkant niet zo gelijkmatig dat de zelfabsorptie van de alfa-deeltje in beide situaties gelijk is.

*Tabel 24 Overzicht van de gemiddelde telsnelheden (alfa-meting) per Bq voor de bovenkant, de onderkant en het gemiddelde van beide kanten voor de twee groepen filters. Onzekerheden zijn  $1s$  van het gemiddelde. Tevens is de variatiecoëfficiënt (%) voor de filtergroepen gegeven,  $n$  is het aantal filters per groep.*

Filtertype	$n$	boven ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )	vc (%)	onder ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )	vc (%)	gemiddelde ( $\text{s}^{-1} \cdot \text{Bq}^{-1}$ )	vc (%)
Glasvezel	21	$0,071 \pm 0,005$	7,0	$0,102 \pm 0,008$	7,5	$0,086 \pm 0,004$	5,2
Membraan	21	$0,099 \pm 0,013$	13	$0,073 \pm 0,013$	18	$0,086 \pm 0,004$	4,2

Voor de bèta-telling waar zelfabsorptie veel minder een rol speelt, treedt dit verschil niet op; zie Tabel 25. Indien men echter de gemiddelden over beide kanten berekent dan blijkt dat voor deze gemiddelden alleen voor de alfa-telling van de glasvezelfilters een spreiding wordt gevonden die iets groter is dan 5 %. Dit betekent dat de gemiddelde telsnelheid over beide kanten gebruikt kan worden om de prestatiekenmerken van de meetmethode te bepalen. Hierbij moet natuurlijk wel steeds rekening gehouden worden met het feit dat de spreiding tussen de belading van de filters voor de alfa-telling voor een inherente spreiding van 5 % zal zorgen. Voor de bèta-tellingen zal deze inherente spreiding ongeveer 3 % bedragen.

*Tabel 25 Overzicht van de gemiddelde telsnelheden (bèta-meting) per Bq voor de bovenkant, de onderkant en het gemiddelde van beide kanten voor de twee groepen filters. Onzekerheden zijn 1s van het gemiddelde. Tevens is de variatiecoëfficiënt (%) voor de filtergroepen gegeven, n is het aantal filters per groep.*

Filtertype	n	boven (s <sup>-1</sup> .Bq <sup>-1</sup> )	vc (%)	onder (s <sup>-1</sup> .Bq <sup>-1</sup> )	vc (%)	gemiddelde (s <sup>-1</sup> .Bq <sup>-1</sup> )	vc (%)
Glasvezel	21	0,340 ± 0,007	2,0	0,358 ± 0,008	2,2	0,349 ± 0,006	1,9
Membraan	21	0,380 ± 0,008	2,3	0,374 ± 0,012	3,3	0,377 ± 0,009	2,5

Naar aanleiding van deze constatering is besloten de twee series van 21 filters te gebruiken voor de intra- en interlaboratorium-validatie waarbij steeds het gemiddelde over de metingen van beide kanten voor het vaststellen van de prestatiekenmerken zal worden gebruikt.

#### 4.3.4 Selectie van de filters

##### Intralaboratorium-validatie

Voor de intralaboratorium-validatie zijn uit ieder groep filters 10 filters aselekt getrokken. Tabel 26 geeft een overzicht van de geselecteerde filters.

*Tabel 26 Overzicht van de codes van de voor de intralaboratorium geselecteerde filters.*

Glasvezelfilters	Membraanfilters
Filtercode	Filtercode
AMCE-G-004	AMCE-M-005
AMCE-G-009	AMCE-M-007
AMCE-G-008	AMCE-M-008
AMCE-G-010	AMCE-M-009
AMCE-G-013	AMCE-M-012
AMCE-G-015	AMCE-M-014
AMCE-G-021	AMCE-M-015
AMCE-G-023	AMCE-M-017
AMCE-G-024	AMCE-M-022
AMCE-G-025	AMCE-M-023

##### Interlaboratorium-validatie

Voor de interlaboratorium-validatie hebben zich 6 laboratoria ingeschreven. Voor dit validatieonderdeel zijn uit ieder van de twee groepen filters aselekt zes filters getrokken. Deze filters zijn daarna gecodeerd. Tevens zijn uit de stokvoorraden van de filters van ieder filtersoort zes onbeladen filters genomen. In Tabel 27 wordt een overzicht gegeven van deze selectie.

*Tabel 27 Overzicht van de codes van de voor de interlaboratorium-validatie geselecteerde filters.*

Glasvezelfilter		Membraanfilters	
Filtercode	Interlabcode	Filtercode	Interlabcode
AMCE-G-014	Fb1	AMCE-M-011	Fa1
AMCE-G-018	Fb2	AMCE-M-024	Fa2
AMCE-G-006	Fb3	AMCE-M-006	Fa3
AMCE-G-005	Fb4	AMCE-M-025	Fa4
AMCE-G-012	Fb5	AMCE-M-021	Fa5
AMCE-G-016	Fb6	AMCE-M-018	Fa6
blanco	blanco b1-6	blanco	blanco a1-6

## 4.4 Intralaboratorium-validatie

### 4.4.1 Herhaalbaarheid

De activiteiten van de filters zijn bepaald uit de telsnelheden zoals die gemeten zijn tijdens de alfa-en bèta-tellingen van de homogeniteitstesten aan de geselecteerde filters (paragraaf 4.3.4). Deze metingen zijn alle door één persoon binnen korte tijd (binnen een week) uitgevoerd en voldoen dus aan de randvoorwaarden voor de bepaling van de herhaalbaarheid. Deze telsnelheden zijn gecorrigeerd voor het teltempo van de blanco en vervolgens gedeeld door het telrendement van de telopstelling. In Tabel 28 worden de gemiddelden en standaardafwijkingen over de verschillende metingen samengevat. Voor de volledigheid zijn in deze tabel ook de gegevens voor de metingen aan de boven- en onderkant gegeven.

*Tabel 28 Herhaalbaarheid. Overzicht van de gemiddelde totaal alfa- en totaal bèta-activiteit (Bq) voor de bovenkant, de onderkant en het gemiddelde van beide kanten voor de twee groepen filters. Onzekerheden zijn 1s van het gemiddelde. Tevens is de variatiecoëfficiënt (%) voor de filtergroepen gegeven, n is het aantal filters per groep.*

Filtertype	n	boven ( Bq)	vc (%)	onder (Bq)	vc (%)	gemiddelde (Bq)	vc (%)
totaal alfa-activiteit							
Glasvezel	10	9,9 ± 0,6	5,9	13,3 ± 0,9	6,9	11,6 ± 0,5	4,0
Membraan	10	13,2 ± 2,0	15	9,7 ± 1,8	19	11,4 ± 0,6	4,9
totaal bèta-activiteit							
Glasvezel	10	40,9 ± 0,7	1,7	42,6 ± 0,8	2,0	41,8 ± 0,6	1,5
Membraan	10	44,4 ± 1,1	2,4	43,8 ± 1,7	3,8	44,1 ± 1,3	3,0



De herhaalbaarheid wordt gekwantificeerd als de variatiecoëfficiënt (%) van de metingen over een filtergroep. De herhaalbaarheid blijkt voor de alfa-tellingen op basis van het gemiddelde van de tellingen van boven- en onderkant 4 % (glasvezelfilters) en 4,9 % (membraanfilters) te zijn. Voor de bèta-tellingen is de herhaalbaarheid 1,5 % (glasvezelfilters) en 3,0 % (membraanfilters).

#### 4.4.2 Reproduceerbaarheid

De activiteiten van de filters zijn bepaald uit *nieuwe* metingen aan dezelfde filters die voor het bepalen van de herhaalbaarheid gebruikt zijn (paragraaf 4.4.1). Deze nieuwe metingen zijn voor ieder filtersoort in 5 series van twee metingen uitgevoerd door drie verschillende medewerkers. De periode waarin deze metingen plaatsgevonden hebben bedroeg ongeveer een maand. Iedere groep van metingen is geanalyseerd met telrendementen die bepaald zijn via metingen aan de kalibratiebronnen die op dezelfde dag als de metingen aan de filters uitgevoerd zijn. Deze metingen voldoen dus aan de condities voor reproduceerbaarheidsmetingen. In Tabel 29 worden de gemiddelden en standaardafwijkingen over deze metingen samengevat.

*Tabel 29 Reproduceerbaarheid. Overzicht van de gemiddelde totaal alfa- en totaal bèta-activiteit (Bq) voor de bovenkant, de onderkant en het gemiddelde van beide kanten voor de twee groepen filters. Onzekerheden zijn 1s van het gemiddelde. Tevens is de variatiecoëfficiënt (%) voor de filtergroepen gegeven, n is het aantal filters per groep.*

Filtertype	n	boven ( Bq)	vc (%)	onder (Bq)	vc (%)	gemiddelde (Bq)	vc (%)
totaal alfa-activiteit							
Glasvezel	10	9,8 ± 0,5	5,4	13,1 ± 1,0	7,4	11,5 ± 0,5	4,7
Membraan	10	13,3 ± 1,7	13	9,9 ± 1,9	19	11,5 ± 0,5	4,8
totaal bèta-activiteit							
Glasvezel	10	41,0 ± 0,8	1,9	42,0 ± 0,9	2,0	41,5 ± 0,6	1,6
Membraan	10	44,5 ± 1,3	2,8	43,9 ± 2,0	4,5	44,2 ± 1,4	3,3

Vergelijking van de waarden in Tabel 28 en Tabel 29 laat zien dat er slechts een marginaal verschil optreedt tussen de waarden gevonden onder herhaalbaarheidscondities en onder reproduceerbaarheidscondities. Voor zowel de alfa- en de bèta-bepalingen en voor beide filtergroepen lijkt de reproduceerbaarheid iets groter dan de herhaalbaarheid.

#### 4.4.3 Uitbijters en uitvallers

De aanwezigheid van eventuele uitbijters en uitvallers is voor zowel de dataset van de herhaalbaarheid en reproduceerbaarheid nagegaan met behulp van Grubbs' outlier test (zie paragraaf 2.2.3). Deze toets is steeds toegepast op de over beide zijden gemiddelde alfa-

activiteit en over beide zijden gemiddelde bèta-activiteit. De toetswaarden lieten zien dat er geen uitbijters en twee uitvallers zijn (membraanfilters, alfa-metingen bij zowel de herhaalbaarheid als de reproduceerbaarheid). Naar aanleiding van deze toets zijn er geen meetwaarden uitgesloten.

#### 4.4.4 Juistheid

Met betrekking tot de totale activiteit kan men opmerken dat er een grote onderschatting van de activiteit optreedt voor de alfa-tellingen. De filters waren beladen met een activiteit van ongeveer 31 Bq  $^{241}\text{Am}$ , hiervan wordt maar ongeveer 11,5 Bq teruggevonden. Dit is niet zo verwonderlijk in het licht van het feit dat 1 filterdikte voldoende is om nagenoeg alle alfa-deeltjes af te stoppen (zie paragraaf 4.5.4). Als men uitgaat van de telsnelheid aan één zijde (hier steeds als gemiddelde van de metingen aan beide zijden) levert deze dus slechts maximaal de helft van de activiteit een bijdrage. De som van de activiteit van beide zijden (ongeveer 23 Bq) zou dus een betere maat voor de totale activiteit zijn. Deze som is echter nog steeds lager dan de activiteit van de belading.

Voor de bèta-tellingen is de teruggevonden activiteit (41-44 Bq) slechts iets lager dan de belading van de filters (ongeveer 46 Bq). Dit kleine verschil wordt zeer waarschijnlijk veroorzaakt doordat ook voor de bèta-deeltjes enige mate van zelfabsorptie in het filter optreedt. Hierbij moet nog worden opgemerkt dat er ook nog enige mate van spill-over van het alfa naar het bèta kanaal zal plaatsvinden (zie ook paragraaf 3.3.4). Dit heeft tot effect dat de teruggevonden bèta-activiteit hoger zal uitvallen. De belading met alfa-activiteit is echter lager dan die met bèta-activiteit dus dit effect van spill-over zal naar verwachting slechts gering zijn. In Tabel 30 wordt een overzicht gegeven van de juistheid (gekwantificeerd als onjuistheid) zoals afgeleid van de reproduceerbaarheidsgegevens waarbij voor de alfa-metingen de som van beide zijden is gebruikt en voor de bèta-metingen het gemiddelde van beide zijden. Tevens wordt het bereik van de gevonden waarden gegeven.

*Tabel 30 Overzicht van onjuistheid (in %) voor de totaal alfa- en totaal bèta-metingen aan de glasvezel en membraanfilters. Waarden zijn gemiddelden over de reproduceerbaarheid data set. Tevens is het bereik aangegeven.*

filtertype	totaal alfa-activiteit		totaal bèta-activiteit	
	glasvezel	membraan	glasvezel	membraan
gemiddelde	-26,1	-25,9	-10,3	-3,0
bereik	-30,9 tot -23,0	-34,5 tot -22,7	-12,0 tot -7,3	-6,7 tot 1,5

#### 4.4.5 Aantoonbaarheidsgrens

De laagst aantoonbare activiteit (Tabel 31) is berekend met de formule in de vergelijking in paragraaf 9.3.1 van de normtekst. Voor de achtergrondtelsnelheden zijn de waarden uit Tabel 21 gebruikt. Voor de teltijd is 3600 s aangehouden. Voor het telrendement zijn de gemiddelde waarden uit het reproduceerbaarheidsonderzoek genomen.

*Tabel 31 Aantoonbaarheidsgrens voor bepaling totaal alfa- en totaal bèta-activiteit voor glasvezel en membraanfilters.*

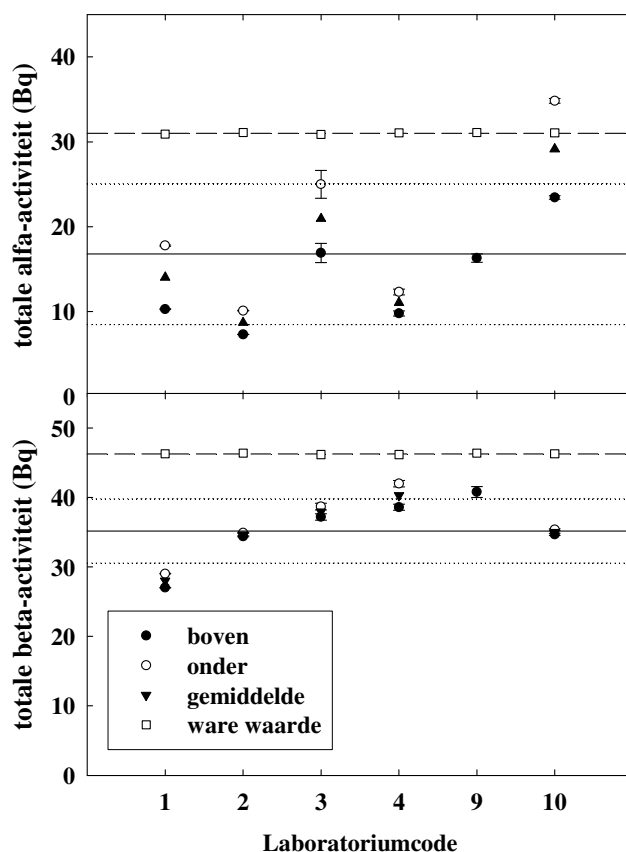
filtertype	totaal alfa-activiteit (Bq)		totaal bèta-activiteit (Bq)	
	glasvezel	membraan	glasvezel	membraan
aantoonbaarheidsgrens (Bq)	0,022	0,014	0,074	0,081

## 4.5 Interlaboratorium-validatie

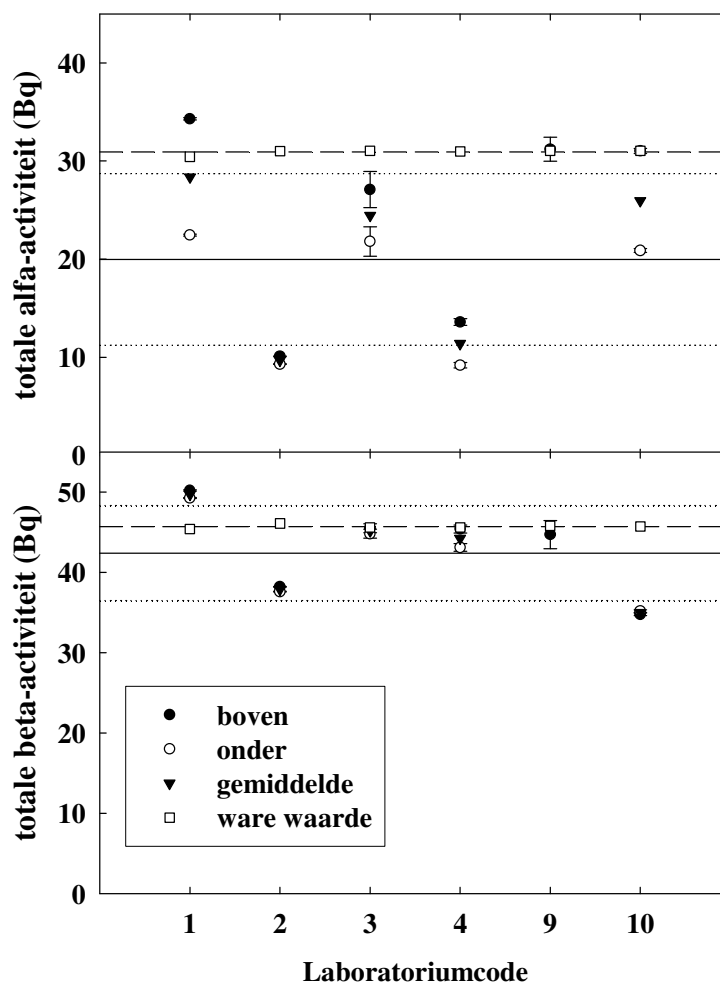
In deze paragraaf worden de resultaten beschreven van de interlaboratorium-validatie. In deze validatie zijn de in paragraaf 4.3.4 geselecteerde glasvezel- en membraanfilters gebruikt. Deze filters zijn onder code gestuurd naar 6 laboratoria die gevraagd waren de totaal alfa- en de totaal bèta-activiteit aan beide kanten van de filters te bepalen volgens concept-NEN 5636.

### 4.5.1 Analyse resultaten

De analyseresultaten worden gegeven in Figuur 8 (glasvezelfilters) en in Figuur 9 (membraanfilters). In paragraaf 4.7.5 worden alle gerapporteerde resultaten samengevat.



*Figuur 8 Analyseresultaten voor glasvezelfilters. Totaal alfa- en totaal bèta-activiteit voor beide kanten van de filters en voor het gemiddelde van beide zijden. De getrokken lijnen geven het gemiddelde van de datapunten, de gestippelde lijnen zijn 1s van dit gemiddelde. De onderbroken lijn is het gemiddelde van alle referentiewaarden.*



*Figuur 9 Analyseresultaten voor membraanfilters. Totaal alfa- en totaal bèta-activiteit voor beide kanten van de filters en voor het gemiddelde van beide zijden. De getrokken lijnen geven het gemiddelde van de datapunten, de gestippelde lijnen zijn 1s van dit gemiddelde. De onderbroken lijn is het gemiddelde van alle referentiewaarden.*

Van de 6 deelnemende laboratoria hebben 5 aan beide kanten van de filters gemeten, één laboratorium (code 9) heeft alleen resultaten gerapporteerd voor één kant van de filters. Voor de volgende analyse is er voor gekozen om steeds het gemiddelde van beide kanten per deelnemer te gebruiken. In de analyse zijn de resultaten van laboratorium 9 niet meegenomen omdat hier alleen informatie van metingen aan één kant van de filters beschikbaar was.

#### 4.5.2 Uitbijters en uitvallers

De aanwezigheid van eventuele uitbijters of uitvallers is getoetst met behulp van Grubbs' outlier test (zie paragraaf 2.2.3). De gevonden toetswaarden zijn alle lager dan deze kritieke waarden en lieten dus zien dat er in de dataset geen uitbijters of uitvallers aanwezig zijn.

### 4.5.3 Reproduceerbaarheid

De interlaboratorium-reproduceerbaarheid wordt hier gekwantificeerd als de variatiecoëfficiënt van de resultaten van de laboratoria. De reproduceerbaarheid voor de bepaling van de alfa-activiteit op glasvezel en membraanfilters is respectievelijk 50 % en 44 %. Voor de totaal bèta-activiteit is de reproduceerbaarheid 13 % (glasvezelfilter) en 14 % (membraanfilter).

Het is duidelijk dat er slechts een marginaal verschil optreedt voor de twee filtertypen. Kennelijk is voor de reproduceerbaarheid het filtertype geen belangrijke factor. Als men in aanmerking neemt dat de inhomogene belading van de filters ongeveer 5 % van de variatie verklaart dan voegt voor de totaal bèta-bepaling de factor laboratorium ongeveer 12 % extra spreiding toe.

Voor de totaal alfa-bepaling is de reproduceerbaarheid veel slechter. In Figuur 8 (glasvezelfilters) en in Figuur 9 (membraanfilters) lijkt het dat er twee groepen te onderscheiden zijn: laboratoria 2 en 4 die lage waarden voor de alfa-activiteit rapporteren en laboratoria 1, 3, 9 en 10, die veel hogere waarden rapporteren. Voor de laboratoria die aan twee kanten gemeten hebben worden de gebruikte telrendementen weergegeven in Tabel 32. Het valt op dat deze telrendementen nogal uiteenlopen. Om na te gaan in hoeverre de factor telrendement van invloed is op de geconstateerde spreiding zijn de gemiddelden (over beide filterzijden) van de door de laboratoria gerapporteerde activiteit vermenigvuldigd met het opgegeven telrendement (zie Tabel 32). De spreiding, uitgedrukt als  $vc$  (%) tussen deze producten is veel kleiner dan die tussen de activiteiten gevonden wordt namelijk 26 % (glasvezelfilters) en 14 % (membraanfilters). Hieruit blijkt dus dat factor telrendement zeer bepalend is voor de gevonden reproduceerbaarheid.

Tabel 32 Overzicht van de gebruikte telrendementen ( %) voor de alfa-bepalingen.

Lab. code	glasvezel		membraanfilters	
	telrendement	Activiteit.telrendement	telrendement	Activiteit.telrendement
	%	Bq. %	%	Bq. %
1	13,85	194	9,44	268
2	33,5	291	33,1	321
3	18,5	388	14,6	357
4	23,15	256	23,15	264
10	12,41*	362	12,95*	336
gemiddelde		298		309
$vc$ %		26 %		14 %

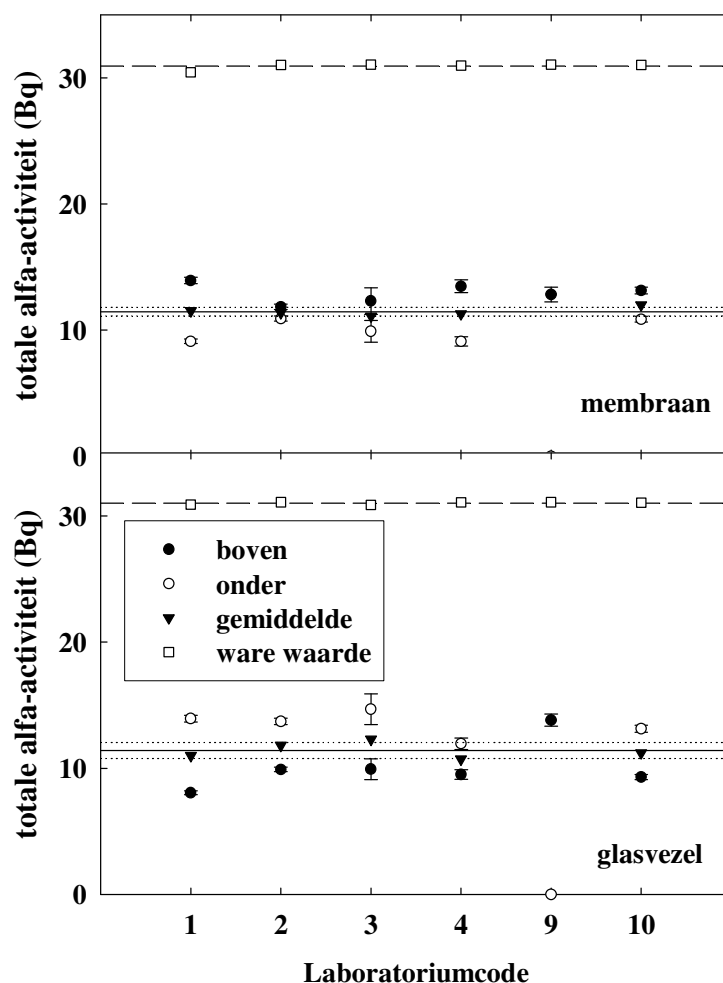
\* Gemiddelde van telrendement zoals gerapporteerd voor boven- en onderzijde.

De slechte reproduceerbaarheid voor de alfa-bepaling is tijdens de nabespreking met de deelnemers aan de orde gesteld. Het bleek dat door de deelnemers de norm met betrekking tot de bepaling van het telrendement verschillend was geïnterpreteerd. Naar aanleiding hiervan is

per e-mail een korte enquête onder de deelnemers gehouden. Daaruit bleek dat twee deelnemers (2 en 4) de procedure zoals bedoeld door de norm hebben toegepast, te weten met een oneindig dun preparaat waarvan het oppervlak gelijk is aan dat van de filters. De andere deelnemers hebben een filter beladen met een gecertificeerde standaardoplossing en dit filter als standaardbron gebruikt. In het eerste geval wordt er dus niet voor optredende zelfabsorptie in het filter gecorrigeerd, in het tweede geval wel, maar de mate waarin hangt sterk af van de manier waarop het filter beladen is. Tengevolge van het feit dat een deel van de deelnemers is afgeweken van de norm wordt er extra spreiding in de resultaten geïntroduceerd en zijn de uitkomsten van dit gedeelte van het validatieonderzoek niet representatief.

Omdat de door de deelnemers gemeten filters alle ook op het KVI zijn gemeten is het evenwel mogelijk om de uitkomsten zodanig te corrigeren dat ze alle teruggeleid worden naar de basis van de bepaling van het telrendement met de oneindig dunne bron die op het KVI gebruikt is. Hiertoe is via de door alle deelnemers gerapporteerde telrendementen en activiteiten voor ieder filter het netto teltempo van het filter zoals gemeten op het deelnemende laboratorium berekend. Hierna is voor ieder filter de ratio berekend van het netto teltempo zoals bij een deelnemend laboratorium gemeten en zoals op het KVI gemeten. Met deze ratio en het telrendement van de oneindig dunne bron op het KVI is daarna het telrendement voor een oneindig dunne bron op een deelnemend laboratorium bepaald (het produkt van ratio en telrendement KVI). Met behulp van deze nieuwe telrendementen is tenslotte de activiteit berekend zoals gemeten zou zijn op een deelnemend laboratorium indien men de oneindig dunne bron van het KVI als ijking had gebruikt. Het uitvoeren van deze exercitie geeft de in Figuur 10 gepresenteerde resultaten. Uit deze figuur blijkt duidelijk dat de spreiding na correctie veel geringer is. De gecorrigeerde resultaten leiden tot waarden voor de reproduceerbaarheid van 2,9 % (glasvezelfilters) en 5,6 % (membraanfilters). Deze waarden zijn zeer vergelijkbaar met de waarden die in de intralaboratorium-validatie zijn gevonden. Dit betekent dat indien dezelfde standaard voor het bepalen van het telrendement gebruikt wordt, de factor laboratorium geen extra spreiding meer veroorzaakt. Hierbij dient dus wel opgemerkt dat dit een zeer ideale situatie is. Als alle deelnemers een andere oneindig dunne standaard voor de bepaling van het telrendement hadden gebruikt dan zou dit zeer waarschijnlijk tot een grotere waarde voor de reproduceerbaarheid geleid hebben.

Tenslotte kan er nog opgemerkt worden dat in principe voor de bèta-bepalingen soortgelijke verschillen tussen de deelnemers in de bepaling van het telrendement hebben plaatsgevonden. Voor deze metingen speelt dit echter een ondergeschikte rol omdat de zelfabsorptie van bèta-straling in de gebruikte filters slechts gering is. De met bèta-activiteit beladen filters vormen dus een goede benadering van een oneindig dunne bron. Om deze reden is er voor gekozen voor de bèta-bepalingen geen correctie uit te voeren.



*Figuur 10 Gecorrigeerde resultaten van de alfa-bepalingen van de interlaboratorium-validatie voor membraanfilters (boven) en glasvezelfilters (onder). Totaal alfa-activiteit voor beide kanten van de filters en voor het gemiddelde van beide zijden. De getrokken lijnen geven het gemiddelde van de datapunten, de gestippelde lijnen komen overeen met 1s van dit gemiddelde. Tevens is de referentiewaarde voor ieder filter aangegeven. De onderbroken lijn is het gemiddelde van alle referentiewaarden.*

#### 4.5.4 Juistheid

Juistheid wordt uitgedrukt als onjuistheid en hier gekwantificeerd als de relatieve afwijking ten opzichte van de referentiewaarde. Als referentiewaarde wordt hier steeds de op de filters aangebrachte activiteit aangehouden.

De bepaling van het telrendement is door de verschillende laboratoria op verschillende wijze uitgevoerd. Hierdoor wordt er een grote spreiding veroorzaakt en is het voor de originele alfa-

tellingen niet goed mogelijk om de juistheid van de meetmethode vast te stellen. Uit de gecorrigeerde metingen volgt een onjuistheid (op basis van de som van beide zijden, zie ook paragraaf 4.4.4) van  $(-26 \pm 4) \%$  (glasvezelfilters) en  $(-25 \pm 2) \%$  (membraanfilters). Deze onjuistheid is van dezelfde orde als die gevonden bij de intralaboratorium-validatie.

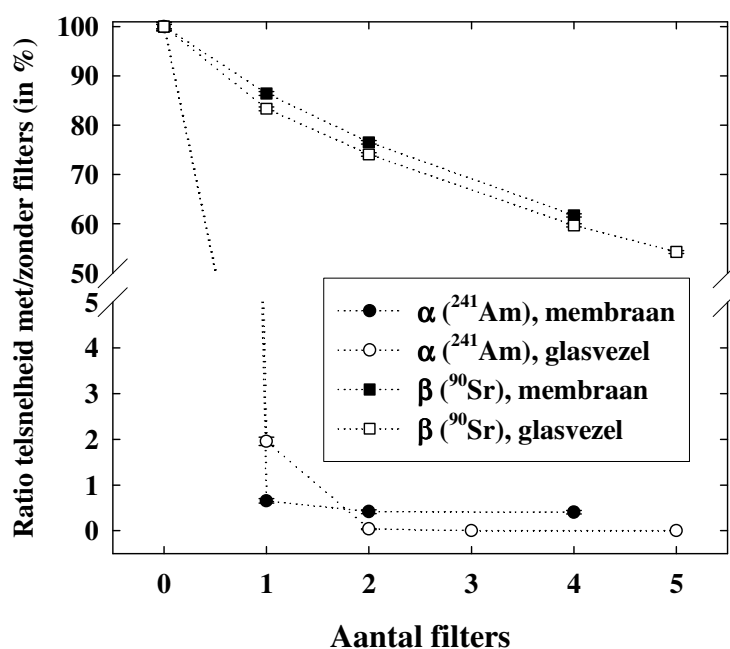
Zoals al eerder opgemerkt spelen voor de bèta-tellingen de verschillen in de bepaling van het telrendement in veel mindere mate en wordt een onjuistheid afgeleid van  $(-24 \pm 10) \%$  (glasvezelfilters) en  $(-7 \pm 13) \%$  (membraanfilters). Deze onjuistheid is ongeveer een factor 2 groter dan die gevonden werd tijdens de intralaboratorium-validatie. Zowel bij de intra- als de interlaboratorium-validatie is de onjuistheid voor glasvezelfilters groter dan voor membraanfilters.

Voor zowel de alfa- als de bètametingen wordt steeds een onderschatting van de werkelijke waarde gevonden. Dit ligt voor de hand omdat de norm voorschrijft een 'oneindige dunne' standaardbron voor de bepaling van het telrendement te gebruiken. Dit betekent dat met zelfabsorptie in het filter *geen* rekening gehouden wordt. Vooral bij de alfa-tellingen (maar ook bij de bèta-tellingen) speelt deze zelfabsorptie echter wel een rol.

In welke mate dit een rol speelt is onderzocht via een aantal metingen met de gasdoorstroomteller van het KVI aan de  $^{241}\text{Am}$ - en  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -standaardbronnen waarbij zich verschillende aantallen filters tussen de bron en de detector bevonden. De resultaten van deze metingen zijn uitgezet in Figuur 11. Uit deze figuur blijkt dat voor bèta-straling van  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  de zelfabsorptie door 1 filterdikte ongeveer 12 % is voor een membraanfilter en iets groter is (ongeveer 17 %) voor een glasvezelfilter. Er zal dus ongeveer 6 % (membraanfilter) en 9 % (glasvezelfilter) verlies optreden voor een half filter (gemiddelde weglengte van de deeltjes in het filter). Een correctie van een dergelijke ordegrrootte zou de gemeten activiteit beter met de activiteit van de belading doen overeenstemmen. Tenslotte kan opgemerkt worden dat voor de bètastraling van  $^{137}\text{Cs}$ , die minder hard is dan die van de  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  bron, het effect van zelfabsorptie nog iets groter zal zijn.

Voor alfa-straling van  $^{241}\text{Am}$  is 1 filterdikte voor zowel de membraan- als de glasvezelfilters nagenoeg voldoende om alle deeltjes af te stoppen. Dit betekent dat met de gekozen wijze van beladen van de filters het inderdaad voor de hand ligt om de som van de metingen aan beide zijden als maat voor de totale activiteit te nemen. Het is natuurlijk wel evident dat er nog steeds een significante onderschatting van de werkelijke waarde zal optreden vanwege zelfabsorptie in, met deze benadering effectief, een halve filterdikte. Voor met vloeistof beladen filters is de onjuistheid dan ongeveer -25 %. Het effect voor via luchtmonstering beladen filters zal waarschijnlijk kleiner zijn omdat bij een dergelijke belading de activiteit naar verwachting minder diep het filter zal binnendringen.





Figuur 11 Ratio telsnelheid van de oneindig dunne  $^{241}\text{Am}$ -bron en de  $^{90}\text{Sr}$ -bron met een aantal filters tussen bron en de detector en deze telsnelheid van de bronnen zonder tussenliggende filters.

## 4.6 Prestatiekenmerken, conclusies en aanbevelingen

### 4.6.1 Prestatiekenmerken

De prestatiekenmerken van concept-NEN 5636 zoals bepaald in dit validatieonderzoek, zijn samengevat in Tabel 33. Deze zijn onderverdeeld naar glasvezelfilters en membraanfilters.

Tabel 33 Overzicht prestatiekenmerken concept-NEN 5636.

Filtertype	alfa-bepaling		bèta-bepaling	
	glasvezel	membraan	glasvezel	membraan
Intralaboratorium-herhaalbaarheid, $v_{C_r}$	4,0 %	4,9 %	1,5 %	3,0 %
Intralaboratorium-reproduceerbaarheid, $v_{C_{RW}}$	4,7 %	4,8 %	1,6 %	3,3 %
Interlaboratorium-reproduceerbaarheid*, $v_{C_R}$	2,9 %	5,6 %	13 %	14 %
Onjuistheid ( $^{241}\text{Am}$ ), intralaboratorium	$(-26 \pm 3) \%$	$(-26 \pm 4) \%$	--	--
Onjuistheid ( $^{241}\text{Am}$ ), interlaboratorium*	$(-26 \pm 4) \%$	$(-25 \pm 2) \%$	--	--
Onjuistheid ( $^{137}\text{Cs}$ ), intralaboratorium	--	--	$(-10,3 \pm 1,4) \%$	$(-3,0 \pm 3,0) \%$
Onjuistheid ( $^{137}\text{Cs}$ ), interlaboratorium	--	--	$(-24 \pm 10) \%$	$(-7 \pm 13) \%$
Aantoonbaarheidsgrens (Bq)	0,022	0,014	0,074	0,081

\* Waarden gebaseerd op naar een enkele standaard voor de bepaling van het telrendement gecorrigeerde waarden

De onjuistheid wordt zowel voor alfa- en bèta-metingen genoemd en is afgeleid voor respectievelijk  $^{241}\text{Am}$  en  $^{137}\text{Cs}$ . Voor de interlaboratoriumkenmerken van de alfa-metingen moet verder worden opgemerkt dat het hier kenmerken betreft die zijn afgeleid nadat de originele waarden gecorrigeerd zijn naar de situatie waarbij alle deelnemers dezelfde oneindig dunne bron als standaard voor de bepaling van het telrendement gebruikt zouden hebben.

#### 4.6.2 Conclusies

In dit validatieonderzoek van concept-NEN 5636 is gevonden dat de intralaboratorium-herhaalbaarheid en interlaboratorium-reproduceerbaarheid voor zowel de alfa- als bèta-bepaling voldoende laag zijn. Ook de interlaboratorium-reproduceerbaarheid ligt voor de bèta-bepaling nog op een aanvaardbaar niveau. Voor de alfa-bepaling was deze oorspronkelijk echter veel te hoog. Na bespreking van de resultaten met de deelnemers bleek dat er verschillende methoden gebruikt waren voor het bepalen van het telrendement. Na een correctie voor deze verschillen is een nieuwe waarde voor de interlaboratorium-reproduceerbaarheid berekend die van dezelfde orde van grootte is als de waarde voor de interlaboratorium-reproduceerbaarheid.

Ten aanzien van de juistheid moet in eerste instantie opgemerkt worden dat deze voor deze norm van ondergeschikt belang is omdat het hier een meting betreft ten opzichte van een standaard radionuclide ( $^{241}\text{Am}$  voor de alfa-bepaling; en  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  voor de bèta-bepaling). In het algemeen zal een beladen filter andere radionucliden bevatten en geeft de methode alleen een equivalente activiteit van het door de norm voorgeschreven standaard radionuclide. Verder zal de in de norm voorgeschreven bepaling van het telrendement met een ‘oneindige dunne’ standaardbron tot een systematische onderschatting leiden van de activiteit ten gevolge van zelfabsorptie in het filter. In dit licht bekeken lijkt de juistheid van de meetmethode voor de bètabepaling op een aanvaardbaar niveau te liggen. Voor de alfa-bepaling is de gevonden juistheid zeer waarschijnlijk minder goed dan in de praktijk met filters die via luchtaanzuiging met zwevend stof zijn beladen. In dergelijke filters zal het effect van zelfabsorptie naar verwachting van minder belang zijn dan bij de in dit onderzoek gebruikte filters die via radionuclidenvloeistoffen beladen zijn.

De aantoonbaarheidsgrens is voldoende laag om bijvoorbeeld natuurlijke radioactiviteit in luchtstof te bepalen.

#### 4.6.3 Aanbevelingen

De belangrijkste conclusie van dit validatieonderzoek is dat de interlaboratorium-reproduceerbaarheid voor de alfa-bepalingen in eerste instantie niet voldoende was. In de nabespreking met de deelnemers bleek dat de grote spreiding veroorzaakt werd doordat

verschillende methoden gebruikt zijn om het telrendement te bepalen. Kennelijk is de beschrijving van de bepaling van het telrendement in de norm niet duidelijk genoeg en moet deze aangepast worden.

Er wordt aanbevolen om de volgende wijzigingen en aanvullingen in de normtekst op te nemen om deze duidelijkheid te verschaffen. De paragraafnummers verwijzen naar de norm.


- Aan de opmerking onder paragraaf 1 toevoegen: Hoewel het optreden van zelfabsorptie dus wordt onderkend is het niet de bedoeling van de norm dat hiervoor gecorrigeerd wordt.
- In de opmerking onder paragraaf 4 het gedeelte 'Indien de identiteit ..... rapportage.' weglaten.
- In paragraaf 5.1 en 5.2 'geometrisch gelijk' vervangen door 'in vorm en oppervlakte gelijk'.
- In paragraaf 5.1 en 5.2 'telpreparaat' vervangen door 'standaardbron'.
- In opmerking 2 onder paragraaf 5.2 'zoals filters.....aërosolen' vervangen door 'zoals oppervlaktebronnen waarbij de activiteit in een zeer dunne laag is aangebracht'.
- In paragraaf 8.2.3, 9.1.1, 9.2.1, 9.2.2, 9.2.3 en 10 'telpreparaat' vervangen door 'standaardbron'.

## 4.7 Bijlagen - certificaten van de radionuclideoplossingen en de bronnen

### 4.7.1 Certificaat van de $^{241}\text{Am}$ oplossing

Amersham plc  
The Grove Centre

**Certificate of calibration of absolutely standardised americium-241 solution** *AM* 11072



ISSUED BY: Amersham plc  
Radiation & Radioactivity  
Calibration Laboratory  
The Grove Centre  
White Lion Road  
Amersham  
Buckinghamshire  
HP7 9LL

ISSUED FOR: AEA Technology QSA GmbH  
Isotrak  
Gieselweg 1  
D-38110 Braunschweig  
Germany

---

**Description** Principal radionuclide: Americium-241

Product code: AMZ24

Solution number: S2/22/156

**Measurement** Reference time: 1200 GMT on 1 May 2002

Radioactive concentration of americium-241:	4.998	kilobecquerels per gram of solution
which is equivalent to:	135.1	nanocuries per gram of solution
Mass of solution:	5.0469	grams
Total activity of americium-241:	25.73	kilobecquerels
which is equivalent to:	682	nanocuries

Method of measurement used:  
4 $\pi$  coincidence and anticoincidence counting using a gas flow proportional counter.

Calibration date(s): 7 May 2002 to 8 May 2002  
The calibration date is provided for added information only, and must not be confused with the reference date. It is the reference date that must be used in all calculations relating to the values of activity.

**Uncertainty** Expanded uncertainty in the radioactive concentration quoted above:  $\pm 0.52\%$

Combined Type A uncertainty:  $\pm 0.03\%$

Combined Type B uncertainty:  $\pm 0.26\%$

Approved Signatory: 

Date of issue: 12<sup>th</sup> June 2002



B D D Singleton Page 1 of 2 pages

This certificate is issued in accordance with the laboratory accreditation requirements of the United Kingdom Accreditation Service. It provides traceability of measurement to recognised national standards, and to units of measurement realised at the National Physical Laboratory or other recognised national standards laboratories. This certificate may not be reproduced other than in full, except with the prior written approval of the issuing laboratory.

## 4.7.2 Certificaat van de $^{137}\text{Cs}$ oplossing

Amersham plc  
The Grove Centre



### Certificate of calibration of absolutely standardised caesium-137 solution

IM 14960

ISSUED  
BY: Amersham plc  
Radiation & Radioactivity  
Calibration Laboratory  
The Grove Centre  
White Lion Road  
Amersham  
Buckinghamshire  
HP7 9LL

ISSUED  
FOR: AEA Technology QSA GmbH  
Isotiah  
Gieschweg 1  
D-38110 Braunschweig  
Germany

Description Principal radionuclide: Caesium-137 Product code: CDZ44  
Daughter radionuclide: Barium-137m Solution number: S2/S6/182

Measurement Reference time: 1200 GMT on 1 January 2003  
Radioactive concentration of caesium-137: 39.20 kilobecquerels per gram of solution  
which is equivalent to: 1.059 microcuries per gram of solution  
Mass of solution: 5.0087 grams  
Total activity of caesium-137: 196.3 kilobecquerels  
which is equivalent to: 5.306 microcuries

Method of measurement used:  
4 $\pi$  efficiency tracing using a liquid scintillation counter.

Calibration date(s): 6 January 2003 to 7 January 2003

The calibration date is provided for added information only, and must not be confused with the reference date. It is the reference date that must be used in all calculations relating to the values of activity.

Uncertainty Expanded uncertainty in the radioactive concentration quoted above:  $\pm 0.88\%$

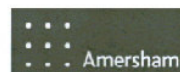
Combined Type A uncertainty:  $\pm 0.08\%$

Combined Type B uncertainty:  $\pm 0.44\%$

Approved  
Signature

Date of  
issue

11<sup>th</sup> April 2005



B D D Singleton

Page 1 of 2 pages

This certificate is issued in accordance with the laboratory accreditation requirements of the United Kingdom Accreditation Service. It provides traceability of measurement to recognised national standards, and to units of measurement realised at the National Physical Laboratory or other recognised national standards laboratories. This certificate may not be reproduced other than in full, except with the prior written approval of the issuing laboratory.

4.7.3 Certificaat van de <sup>241</sup>Am-standaardbron (deel 1)DEUTSCHER KALIBRIERDIENST **DKD**

Kalibrierlaboratorium für Messgrößen der Radioaktivität  
Calibration laboratory for measurements of radioactivity

Akkreditiert durch die / accredited by the

Akkreditierungsstelle des DKD bei der

PHYSIKALISCH-TECHNISCHEN BUNDESANSTALT (PTB)



**AEA Technology QSA GmbH**

Gieselweg 1

38110 Braunschweig, Germany

Phone +49 5307 932-0, fax +49 5307 932-194

Source No. NG 704



DKD-K-06501

Kalibrierschein  
Calibration Certificate

Kalibrierzeichen  
Calibration label

015184

DKD-K-  
06501

05-04

Gegenstand  
Object

**Alpha Wide Area Reference Source**

Hersteller  
Manufacturer

**AEA Technology QSA GmbH**

Typ  
Type

**AMR05012**

Strahler-Nr.  
Source number

**NG 704**

Auftraggeber  
Customer

**Kernfysisch Versneller Instituut  
NL 9747 AA Groningen**

Auftragsnummer  
Order No.

**87410**

Anzahl der Seiten des Kalibrierscheines  
Number of pages of the certificate

**2**

Datum der Kalibrierung  
Date of calibration

**6 April 2005**

Dieser Kalibrierschein dokumentiert die Rückführung auf nationale Normale zur Darstellung der Einheiten in Übereinstimmung mit dem Internationalen Einheitensystem (SI).

Der DKD ist Unterzeichner der multilateralen Übereinkommen der European co-operation for Accreditation (EA) und der International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) zur gegenseitigen Anerkennung der Kalibrierscheine.

Für die Einhaltung einer angemessenen Frist zur Wiederholung der Kalibrierung ist der Benutzer verantwortlich.

This calibration certificate documents the traceability to national standards, which realize the units of measurement according to the International System of Units (SI).

The DKD is signatory to the multilateral agreements of the European co-operation for Accreditation (EA) and of the International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) for the mutual recognition of calibration certificates.

The user is obliged to have the object recalibrated at appropriate intervals.

Dieser Kalibrierschein darf nur vollständig und unverändert weiterverbreitet werden. Auszüge oder Änderungen bedürfen der Genehmigung sowohl der Akkreditierungsstelle des DKD als auch des ausstellenden Kalibrierlaboratoriums. Kalibrierscheine ohne Unterschrift und Stempel haben keine Gültigkeit.

This calibration certificate may not be reproduced other than in full except with the permission of both the Accreditation Body of the DKD and the issuing laboratory. Calibration certificates without signature and seal are not valid.

Stempel  
Seal



13 April 2005

Leiter des Kalibrierlaboratoriums  
Head of the calibration laboratory

Dr. Thieme

Stellvertreter  
Deputy

Schott

Bearbeiter  
Person in charge

Lehmacher / Linko /  
Schöhl / Schott / Schüller

## Certificaat van de <sup>241</sup>Am-standaardbron (deel 2)

Seite  
Page 2

015104
DKD-K-06501
05-04

### Alpha Wide Area Reference Source

Source no.	NG 704
Drawing	VZ-1370
Nuclide	Americium-241
Activity	145 Bq
Alpha surface emission rate	67.6 s <sup>-1</sup> in 2 π steradian
Reference date	6 April 2006 at 12.00 GMT
Dimensions of active surface	Ø 50 mm
Overall dimensions	Ø 60 mm x 3 mm
Leakage and contamination test	The amount of the removable activity is less than 0.1 % of the total activity but does not exceed 200 Bq. (Wipe test according to ISO 9978, no. 5.3.1)
Date of wipe test	12 April 2006
Construction	Am-241 is incorporated into the surface of an anodized aluminium foil of 0.3 mm thickness. The thickness of the activated layer is approximately 6 µm. The activated foil is mounted into a holder.
Measuring method	The activity was determined by comparison with a reference source of the same construction. The alpha surface emission rate was measured using a windowless proportional counter.
Traceability	Additional to the direct traceability to the PTB through the DKD this product complies with the requirements for traceability to NIST specified in the American National Standard "Traceability of Radioactive Sources to the NIST and Associated Instrument Quality Control (ANSI N42.22-1995)". As a requirement of the ANSI N42.22-1995 AEA Technology QSA GmbH participates in the NEI/NIST Measurements Assurance Program of the Nuclear Power Industry.
Uncertainty	The relative uncertainty of the activity is 3 %, the relative uncertainty of the alpha surface emission rate is 3 %. The reported uncertainty, determined according to the DKD-3 report is based on the standard uncertainty multiplied by a coverage factor of k = 2, providing a level of confidence of 95 %. (Ref. NIST Technical Note 1297/"Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement" ISO Guide, 1995)
Radioactive impurities	Related to Am-241 (equal 100 %) the following radioactive impurities were detected: none
Quality assurance system	The quality assurance system of AEA Technology QSA GmbH was certified by Lloyd's Register Quality Assurance (LRQA) according to ISO 9001, issue 2000. Isotrak products meet the requirements of 10CFR50 Appendix B in the USA.
Uniformity	The uniformity of the surface emission rate is better than 10 %.
Remark	This is a Class 2 equivalent reference source which fulfills all requirements of a Class 2 source except that the active area is smaller than 100 cm <sup>2</sup> .



#### 4.7.4 Certificaat van de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ - standaardbron (deel 1)

## DEUTSCHER KALIBRIERDIENST **DKD**

Kalibrierlaboratorium für Messgrößen der Radioaktivität  
Calibration laboratory for measurements of radioactivity

Akkreditiert durch die / accredited by the

Akkreditierungsstelle des DKD bei der

PHYSIKALISCH-TECHNISCHEN BUNDESANSTALT (PTB)



DKD-K-06501

**AEA Technology QSA GmbH**

Gieselweg 1

38110 Braunschweig, Germany

Phone +49 5307 932-0, fax +49 5307 932-194

**Source No. NG 705**

Kalibrierschein  
Calibration Certificate

Kalibrierzeichen  
Calibration label

015181

DKD-K-  
06501

05-04

Gegenstand  
Object

**Beta Wide Area Reference Source**

Hersteller  
Manufacturer

**AEA Technology QSA GmbH**

Typ  
Type

**SIR05012**

Strahler-Nr.  
Source number

**NG 705**

Auftraggeber  
Customer

**Kernfysisch Versnellend Instituut  
NL 9747 AA Groningen**

Auftragsnummer  
Order No.

**87410**

Anzahl der Seiten des Kalibrierscheines  
Number of pages of the certificate

**2**

Datum der Kalibrierung  
Date of calibration

**6 April 2005**

Dieser Kalibrierschein dokumentiert die Rückführung auf nationale Normale zur Darstellung der Einheiten in Übereinstimmung mit dem Internationalen Einheitensystem (SI).

Der DKD ist Unterzeichner der multilateralen Übereinkommen der European co-operation for Accreditation (EA) und der International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) zur gegenseitigen Anerkennung der Kalibrierscheine.

Für die Einhaltung einer angemessenen Frist zur Wiederholung der Kalibrierung ist der Benutzer verantwortlich.

This calibration certificate documents the traceability to national standards, which realize the units of measurement according to the International System of Units (SI).

The DKD is signatory to the multilateral agreements of the European co-operation for Accreditation (EA) and of the International Laboratory Accreditation Cooperation (ILAC) for the mutual recognition of calibration certificates.

The user is obliged to have the object recalibrated at appropriate intervals.

Dieser Kalibrierschein darf nur vollständig und unverändert weiterverbreitet werden. Auszüge oder Änderungen bedürfen der Genehmigung sowohl der Akkreditierungsstelle des DKD als auch des ausstellenden Kalibrierlaboratoriums. Kalibrierscheine ohne Unterschrift und Stempel haben keine Gültigkeit.

This calibration certificate may not be reproduced other than in full except with the permission of both the Accreditation Body of the DKD and the issuing laboratory. Calibration certificates without signature and seal are not valid.

Stempel Seal	Datum Date	Leiter des Kalibrierlaboratoriums Head of the calibration laboratory	Stellvertreter Deputy	Bearbeiter Person in charge
	13 April 2005	Dr. Thieme	 Schott	 Lehmann / Linke / Schott / Schott / Schuier



## Certificaat van de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -standaardbron (deel 2)

Seite  
Page 2

015101
DKD-K- 06501
05-04

### Beta Wide Area Reference Source

Source no.	NG 705
Drawing	VZ-1370
Nuclide	Strontium-90
Activity	179 Bq
Beta surface emission rate	$230 \text{ s}^{-1}$ in $2\pi$ steradian
Reference date	6 April 2005 at 12.00 GMT
Dimensions of active surface	$\varnothing 50 \text{ mm}$
Overall dimensions	$\varnothing 60 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$
Leakage and contamination test	The amount of the removable activity is less than 0.1 % of the total activity but does not exceed 200 Bq. (Wipe test according to ISO 9978, no. 5.3.1)
Date of wipe test	12 April 2005
Construction	Sr-90 is incorporated into the surface of an anodized aluminium foil of 0.3 mm thickness. The thickness of the activated layer is approximately 6 $\mu\text{m}$ . The activated foil is mounted into a holder.
Measuring method	The activity was determined by comparison with a reference source of the same construction. The beta surface emission rate was measured using a windowless proportional counter.
Traceability	Additional to the direct traceability to the PTB through the DKD this product complies with the requirements for traceability to NIST specified in the American National Standard "Traceability of Radioactive Sources to the NIST and Associated Instrument Quality Control (ANSI N42.22-1995)". As a requirement of the ANSI N42.22-1995 AEA Technology QSA GmbH participates in the NEI/NIS 1 Measurements Assurance Program of the Nuclear Power Industry.
Uncertainty	The relative uncertainty of the activity is 5 %, the relative uncertainty of the beta surface emission rate is 3 %. The reported uncertainty, determined according to the DKD-3 report is based on the standard uncertainty multiplied by a coverage factor of $k = 2$ , providing a level of confidence of 95 %. (Ref. NIST Technical Note 1297/"Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement" ISO Guide, 1995)
Radioactive impurities	Related to Sr-90 (equal 100 %) the following radioactive impurities were detected: none
Quality assurance system	The quality assurance system of AEA Technology QSA GmbH was certified by Lloyd's Register Quality Assurance (LRQA) according to ISO 9001, issue 2000. Isotrak products meet the requirements of 10CFR50 Appendix B in the USA.
Uniformity	The uniformity of the surface emission rate is better than 10 %.
Remark	This is a Class 2 equivalent reference source which fulfills all requirements of a Class 2 source except that the active area is smaller than 100 $\text{cm}^2$ .

#### 4.7.5 Analyseresultaten interlaboratorium-validatie concept-NEN 5636

*Overzicht van de analyse resultaten voor de beladen glasvezelfilters.*

Laboratorium	totaal alfa-activiteit (Bq)		totaal bèta-activiteit (Bq)	
	boven	onder	boven	onder
1	10,28	17,77	27,02	29,03
2	7,3	10,1	34,4	34,9
3	16,9	25,0	37,2	38,7
4	9,78	12,3	38,6	42,0
9	16,3	--	40,8	--
10	23,44	34,83	34,68	35,36

*Overzicht van de analyse resultaten voor de beladen membraanfilters.*

Laboratorium	totaal alfa-activiteit (Bq)		totaal bèta-activiteit (Bq)	
	boven	onder	boven	onder
1	34,3	22,45	50,18	49,26
2	10,1	9,3	38,2	37,6
3	27,1	21,8	45,5	44,8
4	13,6	9,19	45,4	43,1
9	31,2	--	44,7	--
10	31,03	20,88	34,77	35,17

*Overzicht van de gerapporteerde telrendementen voor de membraanfilters*

Laboratorium	alfa-telrendement ( %)		bèta-telrendement ( %)	
	boven	onder	boven	onder
1	9,44	9,44	36,59	36,59
2	33,10	33,10	51,40	51,40
3	14,60	14,60	44,60	44,60
4	23,15	23,15	38,94	38,94
9	17,3	--	43,6	--
10	11,58	14,32	43,34	43,42

*Overzicht van de gerapporteerde telrendementen voor de glasvezelfilters*

Laboratorium	alfa-telrendement ( %)		bèta-telrendement ( %)	
	boven	onder	boven	onder
1	13,85	13,85	45,75	45,75
2	33,50	33,50	51,60	51,60
3	18,50	18,50	49,60	49,60
4	23,15	23,15	38,94	38,94
9	33,7	--	45,1	--
10	12,73	12,09	43,23	43,56

*Overzicht van de analyse resultaten voor de onbeladen glasvezel- en membraanfilters.*

Laboratorium	totaal alfa-activiteit (Bq)		totaal bèta-activiteit (Bq)	
	glasvezel	membraan	glasvezel	membraan
1	< 0,006	< 0,0044	< 0,0101	< 0,0053
2	0,0049	0,0024	0,099	0,0089
3	< 0,077	< 0,084	0,091	< 0,042
4	< 0,04	< 0,03	< 0,15	0,16
9	--	---	--	--
10	0,33	0,22	2,52	2,36



## 5. Concept-NEN 6421

### 5.1 Voorwoord

In dit hoofdstuk wordt nader ingegaan op de validatie van concept-NEN 6421. Deze norm beschrijft de bepaling van de volumieke totaal bèta-activiteit en volumieke rest-bèta-activiteit van niet-vluchtige bestanddelen in watermonsters. Het betreft een relatief eenvoudige, snelle screeningsmethode waarbij de resultaten worden uitgedrukt in een  $^{40}\text{K}$ -equivalente activiteit. Bij deze methodiek wordt het watermonster of een gedeelte hiervan drooggedampt en wordt met behulp van een bètateller de telsnelheid van het indampresidu bepaald. Dit telresultaat wordt vervolgens vergeleken met dito metingen aan een kaliumchloride-standaard. De te valideren normtekst is beschreven in concept-NEN 6421:2005 [18].

In paragraaf 5.2 wordt de wijze beschreven waarop de materialen voor het validatieonderzoek zijn aangemaakt. De intra- en interlaboratorium-validatie komen respectievelijk in paragraaf 5.3 en paragraaf 5.4 aan de orde. De belangrijkste conclusies zijn opgenomen in paragraaf 5.5.

### 5.2 Materialen voor validatieonderzoek

#### 5.2.1 Monsterneming en -voorbereiding

Op 13 april 2005 is circa 50 l Waalwater bemonsterd ter hoogte van snelweg A50. Daarbij is gebruik gemaakt van PE-containers met een volume van 5 l, waaraan reeds de conform de norm benodigde hoeveelheid salpeterzuur was toegevoegd. Aansluitend heeft op het laboratorium een filtratie van het water plaatsgevonden (glasvezelfilter type A/E, Pall Corporation). Vanaf dat moment is het monstermateriaal bij 4° C in het donker bewaard.

De verschillende monsters waarin in het validatieprogramma is voorzien, zijn weergegeven in Tabel 34. Ieder monster omvat een volume van circa 1 l. Gebruik is gemaakt van monsterflessen van PE. Daarnaast zijn zes monsters met een volume van 100 ml genomen ter bepaling van het kaliumgehalte. Zoals aangegeven in de tabel zijn aan de monsters met code Wa geen toevoegingen gedaan. Na filtratie is het monstermateriaal direct in de daarvoor bestemde monsterflessen overgebracht.

---

18 Concept-NEN 6421:2005. Bepaling van de volumieke bèta-activiteit en volumieke rest-bèta-activiteit van niet-vluchtige bestanddelen.

*Tabel 34 Overzicht monstercodering en samenstelling rondzendmonsters*

Codering	Basis	Toevoeging		Aantal monsterflessen		
		$^{137}\text{Cs}$	$^{40}\text{K}$	Intralab	Interlab	Totaal
Wal...24	Waalwater	0	0	12	12	24
Wbl...12	Waalwater	x	0	0	12	12
Wcl...12	Waalwater	x	x	0	12	12
Totaal						48

### 5.2.2 Rondzendmonster Wb

Aan de watermonsters met code Wb is een kleine hoeveelheid  $^{137}\text{Cs}$  toegevoegd. Daarbij is gebruik gemaakt van een standaardoplossing van dit nuclide (Amersham, productcode CDZ24). De massieke activiteit van deze oplossing bedraagt volgens de leverancier 4042  $\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$  met als referentiedatum 1 januari 2003. De gecombineerde standaardonzekerheid ( $k=1$ ) in deze waarde bedraagt 0,44 %. Het bijbehorende kalibratiecertificaat is in paragraaf 5.6.1 van dit rapport opgenomen. Van deze oplossing is een verdunning gemaakt in  $0,1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$  HCl, waarvan vervolgens een nauwkeurige hoeveelheid aan het water is toegevoegd. Bij de berekening van de standaardonzekerheid in het  $^{137}\text{Cs}$ -gehalte van het watermonster is de onzekerheid die is geïntroduceerd via een aantal uitgevoerde wegingen verwaarloosd. Wel is de onzekerheid van een pipetteerstap hierin verdisconteerd en gecombineerd met de onzekerheid van de standaardoplossing. De volumieke  $^{137}\text{Cs}$ -additie is aldus berekend op een waarde van  $(9,93 \pm 0,05) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  (gemiddelde  $\pm 1s$ ), met als referentiedatum 1 juni 2005.  $^{137}\text{Cs}$  vervalt onder uitzending van twee bèta-deeltjes, respectievelijk met een gemiddelde energie van 0,173 MeV (94,6 %) en 0,425 MeV (5,4 %) [19]. Daarnaast draagt ook de kortlevende dochter van  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ , bij aan de totaal bèta-activiteit. Bij verval naar het stabiele  $^{137}\text{Ba}$  komt een aantal interne conversie-elektronen vrij met een energie van 0,62-0,66 MeV. Het voorkomen hiervan bedraagt ongeveer 10 %. Gegeven de vertakingsgraad van 94,6 % van de dochter  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  volgt hieruit dat de geaddeerde bèta-activiteit  $(10,89 \pm 0,05) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  bedraagt.

### 5.2.3 Rondzendmonster Wc

Voor de bereiding van de rondzendmonsters met code Wc is gebruik gemaakt van vast kaliumchloride, betrokken van de firma Baker. Conform opgave heeft dit een zuiverheid van >99,9 %. Daarnaast is gebruik gemaakt van dezelfde verdunning van  $^{137}\text{Cs}$  als vermeld in paragraaf 5.2.2. De  $^{137}\text{Cs}$ -oplossing is vervolgens toegevoegd aan een bekende oplossing van kaliumchloride in water. Na homogeniseren is een nauwkeurige hoeveelheid toegevoegd aan het Waalwater. De volumieke  $^{137}\text{Cs}$ -activiteit is op een zelfde wijze berekend als vermeld in paragraaf 5.2.2. Voor de berekening van de  $^{40}\text{K}$ -activiteit is gebruik gemaakt van de in de norm opgenomen waarde voor de massieke bèta-activiteit van kaliumchloride ( $14,8 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ ),

19 International Commission on Radiological Protection. Radionuclide transformations. Energy and intensity of emissions. Oxford: Pergamon Press; ICRP-publicatie 38, Ann ICRP 11-13; 1983.

waarin de eveneens in de norm vastgelegde bèta-emissiewaarschijnlijkheid van 0,893 is verdisconteerd. De onzekerheid in het  $^{40}\text{K}$ -gehalte wordt voornamelijk bepaald door de (eenmalige) pipetteerstap. Voor de volumieke activiteit van het watermonster Wc gelden de volgende additie-waarden:

$^{137}\text{Cs}$	:	$(9,12 \pm 0,05) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$	(peildatum 1 juni 2005)
$^{137}\text{Cs}$ (bèta-activiteit)	:	$(10,00 \pm 0,05) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$	(peildatum 1 juni 2005)
$^{40}\text{K}$	:	$(9,51 \pm 0,02) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$	
$^{40}\text{K}$ (bèta-activiteit)	:	$(8,50 \pm 0,02) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$	

#### 5.2.4 Homogeniteitstest

De toevoegingen zijn zodanig gekozen dat het residu na indampen volgens het Besluit Stralingsbescherming [20] niet als radioactief behoefde te worden beschouwd. Het nadeel hiervan is dat verificatie van de homogeniteit binnen redelijke teltijden niet met voldoende nauwkeurigheid is te verwezenlijken. De rondzendmonsters Wb en Wc zijn daarom elk als batch aangemaakt en na homogenisatie over de verschillende monsterflessen verdeeld. Doordat de oplossingen geen vaste deeltjes bevatten, kan de inhoud van de verschillende monsterflessen daarom als identiek worden beschouwd.

#### 5.2.5 Additionele analyses

Zoals aangegeven in paragraaf 5.2.1 is een zestal submonsters met code Wa onderzocht op kaliumgehalte. Dit onderzoek is uitgevoerd met behulp van atomaire absorptiespectrometrie en hieruit is een gemiddelde kaliumconcentratie naar voren gekomen van  $4,3 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$  met een standaardafwijking van  $0,1 \text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$  ( $n=6$ ). Uitgaande van de in de normtekst opgenomen omrekenfactor voor de massieke bèta-activiteit van kalium van  $28,3 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$ , bedraagt de volumieke bèta-activiteit van het toegepaste Waalwater  $(0,122 \pm 0,003) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  ( $n=6$ ).

Daarnaast zijn twee submonsters met code Wa gammaspectrometrisch onderzocht in een lage achtergrondopstelling voorzien van een Ge-detector. Daarbij is gebruik gemaakt van Marinelli-bekers. Enkele additionele gegevens met betrekking tot de uitgevoerde analyse zijn:

Monstercode	:	Wa
Grootte analysemonster	:	1000 ml
Toegepaste teltijd	:	60.000 s per monster

Uit de opgenomen gammaspectra is een volumieke  $^{137}\text{Cs}$ -activiteit bepaald van respectievelijk 0,48 en  $0,35 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ . De gemiddelde waarde bedraagt derhalve  $(0,42 \pm 0,09) \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  ( $n=2$ ), hetgeen overeenkomt met een bèta-activiteit van  $0,46 \pm 0,10 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$  ( $n=2$ ).

## 5.3 Intralaboratorium-validatie

### 5.3.1 Herhaalbaarheid

De herhaalbaarheid van concept-NEN 6421 is nagegaan door een zestal monsters tegelijkertijd naast elkaar door dezelfde medewerker te laten opwerken. Ook de telling van het verkregen residu heeft tegelijkertijd plaatsgevonden (Berthold LB770). Het telrendement van de meetapparatuur is bepaald aan de hand van drie kaliumchloridestandaarden. Enkele additionele gegevens met betrekking tot de uitgevoerde analyse zijn:

Monstercode	: Wa
Grootte analysemonster	: 300 ml
Areïeke massa telpreparaat	: circa 200 g·m <sup>-2</sup>
Toegepaste teltijd	: 60.000 s per monster
Telrendement (bèta-activiteit)	: (0,394 ± 0,004) Bq·s <sup>-1</sup>

Het onderzoek heeft een gemiddelde waarde opgeleverd van 0,56 Bq·l<sup>-1</sup>, met een standaardafwijking van 0,01 Bq·l<sup>-1</sup> ( $n=6$ ). Dit komt neer op een herhaalbaarheid van 1,9 %. Op basis van het stochastisch karakter van de tellingen alleen zou een waarde van 1,7 % zijn verwacht.

### 5.3.2 Reproduceerbaarheid

De intralaboratorium-reproduceerbaarheid is eveneens bepaald aan het monster Wa. In dit geval zijn de analyses inclusief de tellingen door twee medemerkers op vier verschillende dagen uitgevoerd. De grootte van het analysemonster, de toegepaste teltijd en het telrendement zijn daarbij hetzelfde gehouden als vermeld in paragraaf 5.3.1; de resultaten zijn daardoor onderling goed vergelijkbaar. Het resultaat bedraagt (0,58 ± 0,04) Bq·l<sup>-1</sup> (gemiddelde ± 1s) bij 7 waarnemingen. De intralaboratorium-reproduceerbaarheid bedraagt derhalve 6,1 %.

### 5.3.3 Uitbijters en uitvallers

De gevonden meetwaarden zijn getoetst op uitbijters met behulp van de Mandel  $k$ -toets beschreven in paragraaf 2.2.2. Uit deze toets is gebleken dat er geen uitbijters in de betreffende series aanwezig waren.

### 5.3.4 Aantoonbaarheidsgrens

De laagst aantoonbare volumieke totaal bèta-activiteit is berekend conform de in de normtekst aangegeven formules. Daarbij is gebruik gemaakt van de volgende gegevens, behorende bij het watermonster Wa:

Achtergrondteltempo ( $R_0$ )	: 0,0062 s <sup>-1</sup>
Meettijd van de achtergrond ( $t_0$ )	: 60.000 s
Indamprest per volume water ( $\rho_r$ )	: 1824 g·m <sup>-3</sup>
Telrendement kaliumchloride ( $\epsilon$ )	: 0,3944 (Bq·s) <sup>-1</sup>
Massa telmonster ( $m_m$ )	: 0,547 g



De laagst aantoonbare activiteit is afhankelijk van de toegepaste meettijd van het telmonster. Tabel 35 geeft hiervan een aantal voorbeelden.

*Tabel 35 Aantoonbaarheidsgrens en meettijd van het telmonster*

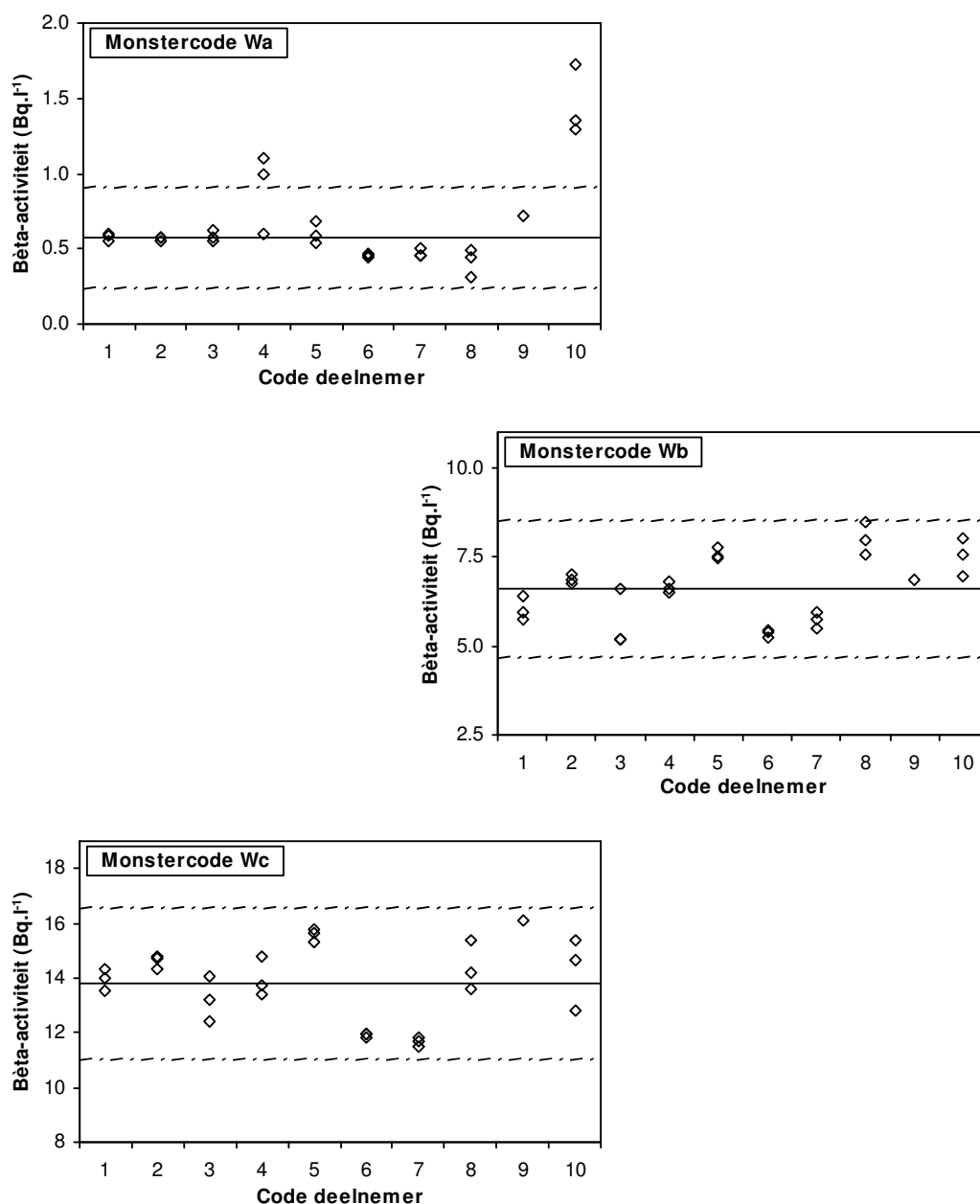
Meettijd (s)	Laagst aantoonbaar teltempo ( $s^{-1}$ )	Aantoonbaar- heidsgrens ( $Bq \cdot l^{-1}$ )
3600	0,0041	0,035
14.400	0,0022	0,019
60.000	0,0014	0,012

## 5.4 Interlaboratorium-validatie

### 5.4.1 Analyseresultaten

De resultaten zoals deze door de verschillende deelnemers zijn gerapporteerd, zijn opgenomen in paragraaf 5.6.2 t/m 5.6.4. Per monster is aangegeven: het analyseresultaat uitgedrukt in een  $^{40}K$  equivalente bèta-activiteit in  $Bq \cdot l^{-1}$ , alsmede de telfout en het bèta-telrendement, beide uitgedrukt in %. Per deelnemer is uit de analyseresultaten het gemiddelde van de drie waarnemingen berekend en de absolute en relatieve standaardafwijking. Deze laatste twee kentallen variëren sterk per deelnemer. Het lag in de bedoeling dat iedere deelnemer de analyse in drievoud zou uitvoeren, inclusief de indampstap. Een aantal laboratoria echter heeft de indampstap slechts eenmalig uitgevoerd en vervolgens het indampresidu driemaal geteld. De voor deze laboratoria berekende relatieve standaardafwijking geeft derhalve voornamelijk de onzekerheid ten gevolge van de telstatistiek aan. Bij de laboratoria die wel een volledige drievoudige analyse hebben uitgevoerd, is de variatiecoëfficiënt in het algemeen groter doordat bij de opwerking een extra onzekerheid wordt geïntroduceerd. Sommige van deze laboratoria hebben daarnaast per analyse een kalibratie uitgevoerd (zie paragraaf 5.6.2 t/m 5.6.4), terwijl andere gebruik hebben gemaakt van een gemiddelde kalibratiefactor. Ook dit geeft aanleiding tot een grotere onzekerheid in het gemiddelde, zij het slechts in geringe mate. De per deelnemer bepaalde relatieve standaardafwijking zou inzicht hebben gegeven in de intralaboratorium-reproduceerbaarheid (c.q. herhaalbaarheid) van het bewuste laboratorium. Gezien de variatie in de onderliggende grondslag van deze grootheid is van dit gegeven verder geen gebruik gemaakt. In Figuur 12 zijn de meetresultaten van de deelnemers grafisch weergegeven.

Na afloop van de bespreking van de resultaten met de deelnemers is afgesproken dat een korte inventarisatie zou worden gehouden om meer duidelijkheid te verkrijgen over de wijze waarop ieder laboratorium de analyses heeft uitgevoerd. De verzonden vragenlijst is opgenomen in paragraaf 5.6.6, de resultaten hiervan in paragraaf 5.6.7.



*Figuur 12 Grafische weergave van de door de deelnemers gerapporteerde resultaten. Van boven naar beneden zijn dit de resultaten van respectievelijk watermonster Wa, Wb en Wc. De doorgetrokken horizontale lijn in deze grafieken geeft het gemiddelde weer (zonder uitbijter), de onderbroken lijnen het gemiddelde  $\pm 2s$ .*

#### 5.4.2 Uitbijters en uitvallers

Voor het toetsen of het gerapporteerde laboratoriumgemiddelde als uitbijter kan worden beschouwd, is gebruik gemaakt van de Mandel  $h$ -toets. Deze is nader beschreven in paragraaf 2.2. Daarbij is er van uitgegaan dat alle laboratoria de bepaling in drievoud hebben uitgevoerd. Waarden boven de toetsingsdrempel behorende bij een 1 % betrouwbaarheids-

interval zijn als uitbijter beschouwd. Dit betrof het resultaat van deelnemer 10 bij monster Wa. Daarnaast zijn ook de voor het gehalte in Wa gecorrigeerde waarden van de monsters Wb en Wc getoetst op uitbijters. Deze bleken niet aanwezig.

### 5.4.3 Reproduceerbaarheid

De interlaboratorium-reproduceerbaarheid geeft aan in hoeverre de door de verschillende deelnemers verkregen resultaten met elkaar overeenkomen. In Tabel 36 zijn de resultaten van het vergelijkingsonderzoek samengevat, waarbij de in paragraaf 5.4.2 aangegeven uitbijter buiten beschouwing is gelaten. De interlaboratorium-reproduceerbaarheid is berekend volgens de vergelijkingen vermeld in paragraaf 2.1. Voor het watermonster met code Wa ligt deze op een waarde van circa 30 %. Naarmate de volumieke bèta-activiteit toeneemt, stijgt tevens de overeenstemming tussen de deelnemers. Voor monster Wb bedraagt deze 15 %, voor monster Wc 10 %. De variatiecoëfficiënt gebaseerd op alle waarnemingen exclusief uitbijters laat vergelijkbare waarden zien.

*Tabel 36 Samenvatting meetresultaten exclusief uitbijters*

Monstercode	Gemiddelde $\pm 1s$ (Bq·l <sup>-1</sup> )	vc (%)	Aantal deelnemers	Aantal waarnemingen	vc <sub>R</sub> (%) <sup>a</sup>
Wa	0,58 $\pm$ 0,17	29	9	25	29
Wb	6,6 $\pm$ 1,0	15	10	28	15
Wc	13,8 $\pm$ 1,4	10	10	28	10

<sup>a</sup> Statistische parameters (zie paragraaf 2.1)

### 5.4.4 Juistheid

De juistheid van een methode geeft aan of er sprake is van een systematische afwijking. Deze grootte wordt in het algemeen uitgedrukt in de onjuistheid, de afwijking ten opzichte van de 'ware' waarde. Als 'ware' waarde zijn bij de evaluatie de aan de watermonsters gedane addities aangehouden, zoals deze zijn gegeven in paragraaf 5.2.2 en 5.2.3.

Voor elk van de deelnemers is het verschil bepaald tussen de gemiddelde uitkomsten van de watermonsters Wb en Wa en voor Wc en Wa; zie paragraaf 5.6.5 en een samenvatting in Tabel 37. Tevens is de onjuistheid aangegeven.

*Tabel 37 Samenvatting bewerkte meetresultaten*

Uitgevoerde bewerking	Gemiddelde $\pm 1s$ (Bq·l <sup>-1</sup> )	vc (%)	Aantal deelnemers	Onjuistheid (%)
Wb-Wa	5,9 $\pm$ 0,9	14	10	-45 $\pm$ 8
Wc-Wa	13,3 $\pm$ 1,4	10	10	-28 $\pm$ 7

Uit de tabel blijkt dat in alle gevallen slechts een gedeelte van de geaddeerde activiteit wordt teruggevonden; afhankelijk van het monster is dit gemiddeld 55 % en 72 %. Een dergelijke uitkomst lag in de lijn der verwachting.  $^{137}\text{Cs}$  heeft een aanzienlijk lagere (maximale) bèta-energie dan  $^{40}\text{K}$ , waardoor de correctiefactor voor dit nuclide op een lagere waarde uitkomt. De mate waarin wordt onder meer bepaald door de dikte van het venster van de detector en de areïeke massa van het telpreparaat. Doordat aan het watermonster Wc naast  $^{137}\text{Cs}$  ook  $^{40}\text{K}$  is toegevoegd, dat gezien de in de norm voorgeschreven kalibratiewijze vrijwel geheel wordt teruggevonden, ligt de onjuistheid voor dit monster op een lager niveau. Op basis van de voorliggende gegevens kan de onjuistheid van (Wc-Wa) berekend worden op -24 % [21], hetgeen vergelijkbaar is met de waarde uit Tabel 38 van -28 %.

Onder de aanname dat de areïeke massa's van de telpreparaten van de monsters Wb en Wc van dezelfde orde van grootte zijn geweest, kan een correctie worden uitgevoerd voor de  $^{137}\text{Cs}$ -bijdrage in het monster Wc. Hiertoe is op basis van de uitkomsten van het monster Wb het telrendement voor  $^{137}\text{Cs}$  bepaald en dit gegeven is gebruikt om de bijdrage van  $^{137}\text{Cs}$  aan het telresultaat van monster Wc te berekenen. Wanneer deze bijdrage vervolgens van het netto telresultaat van monster Wc wordt afgetrokken, resulteert de toegevoegde volumieke  $^{40}\text{K}$ -activiteit. In formulevorm ziet de bewerking er als volgt uit:

$$C_A = (W_c - W_a) - (W_b - W_a) \cdot \frac{10,00}{10,89}$$

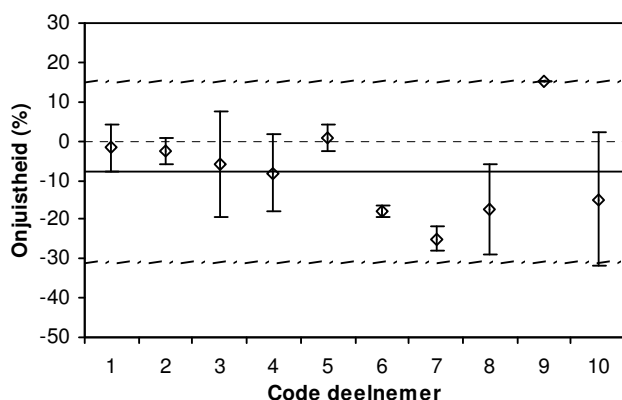
waarin  $C_A$  de aan monster Wc toegevoegde volumieke  $^{40}\text{K}$ -activiteit ( $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ),  $W_a$ ,  $W_b$  en  $W_c$  de bepaalde volumieke totaal bèta-activiteit in de overeenkomstige watermonsters ( $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ) en de waarden 10,00 en 10,89 de toegevoegde volumieke  $^{137}\text{Cs}$  bèta-activiteit ( $\text{Bq}\cdot\text{l}^{-1}$ ) aan respectievelijk monster Wc en Wb. De aldus berekende volumieke  $^{40}\text{K}$  bèta-activiteit is vervolgens vergeleken met de conform paragraaf 5.2.3 aan monster Wc toegevoegde hoeveelheid. De resultaten van deze bewerking zijn gegeven in paragraaf 5.6.5 en Figuur 13.

De onjuistheid is berekend op een gemiddelde  $\pm 1s$  van  $(-8 \pm 12) \%$  ( $n=10$ ). Wel lijkt er sprake te zijn van een tweedeling waarin de helft van de deelnemende laboratoria een waarde vindt binnen  $\pm 10 \%$ , terwijl de andere laboratoria een spreidingsbreedte van -25 % tot + 15 % laten zien (zie Figuur 13). De oorzaak hiervan is mogelijk het feit dat de telpreparaten van monster Wb en Wc niet een zelfde areïeke massa hebben. Het uit monster Wb berekende telrendement voor  $^{137}\text{Cs}$  zal dan niet overeenkomen met dat van monster Wc.

Het is niet mogelijk de onjuistheid te schatten aan de hand van de analyseresultaten van het watermonster Wa, doordat de 'ware' waarde hiervan niet bekend is. Weliswaar is de volumieke activiteit van  $^{40}\text{K}$  en  $^{137}\text{Cs}$  via alternatieve methoden bepaald (zie paragraaf 5.2.5), doch wanneer rekening wordt gehouden met het lage telrendement voor  $^{137}\text{Cs}$ , resulteert een waarde voor de totale bèta-activiteit die aanmerkelijk lager is dan het berekende gemiddelde uit Tabel 36. Dit wordt veroorzaakt doordat in het Waalwater nog andere radionucliden aanwezig zijn, onder meer afkomstig van de natuurlijke vervalreeksen van uraan en thorium.

---

21 Berekeningswijze:  $1 - (0,55 \times 10,0 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \text{ } ^{137}\text{Cs} + 1,00 \times 8,5 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \text{ } ^{40}\text{K}) / 18,5 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1} \text{ } ^{137}\text{Cs} \text{ en } ^{40}\text{K} = 0,24$ .



*Figuur 13 Onjuistheid per deelnemer met betrekking tot de aan monster Wc toegevoegde  $^{40}\text{K}$ -activiteit. De doorgetrokken horizontale lijn geeft het gemiddelde weer, de beide onderbroken lijnen het gemiddelde  $\pm 2s$ . De gestippelde lijn geeft het 0 %-niveau aan. De aangegeven foutenbalken zijn berekend uit de door de deelnemers gerapporteerde waarnemingen en representeren  $1s$ .*

## 5.5 Prestatiekenmerken, conclusies en aanbevelingen

### 5.5.1 Prestatiekenmerken

De prestatiekenmerken van concept-NEN 6421, zoals bepaald in het voorliggende validatieonderzoek, zijn samengevat in Tabel 38. Deze gelden voor een natuurlijk oppervlaktewater, namelijk het watermonster met code Wa. De onjuistheid is afgeleid van het monster Wb, dat een met monster Wa vergelijkbaar indampresidu heeft. Deze onjuistheid geldt  $^{137}\text{Cs}$ , het belangrijkste artificiële nuclide in watermonsters qua voorkomen.

*Tabel 38 Overzicht prestatiekenmerken concept-NEN 6421 (natuurlijk niveau)*

Kenmerk	Gemiddelde	Bereik
Herhaalbaarheid	2 %	
Intralaboratorium-reproduceerbaarheid	6 %	
Interlaboratorium-reproduceerbaarheid	29 %	
Onjuistheid ( $^{137}\text{Cs}$ )	-45 %	-30 tot -55 %
Aantoonbaarheidsgrens		
- bij een meettijd van 60.000 s	0,012 Bq·l <sup>-1</sup>	
- bij een meettijd van 14.400 s	0,019 Bq·l <sup>-1</sup>	
- bij een meettijd van 3600 s	0,035 Bq·l <sup>-1</sup>	

### 5.5.2 Conclusies

De herhaalbaarheid en de intralaboratorium-reproduceerbaarheid, beide een maat voor de precisie van de methodiek, liggen op een zeer aanvaardbaar niveau van respectievelijk 2 % en 6 %. Ook de minimaal aantoonbare volumieke totaal bèta-activiteit ligt voldoende laag. In het voorliggende onderzoek is deze bepaald uitgaande van een analysemonster van 300 ml. Eventueel kan de aantoonbaarheidsgrens nog verder worden verlaagd door meer monster in bewerking te nemen. Aanmerkelijk slechter scoort de norm op het vlak van de prestatiekenmerken die de onderlinge samenhang of de onjuistheid weergeven. De juistheid is echter een vast gegeven dat inherent samenhangt met de meetmethodiek. Wanneer in plaats van  $^{137}\text{Cs}$  de additie zou zijn uitgevoerd met een hardere bèta-straler, zou de juistheid beter zijn uitgekomen. Een oplossing voor dit probleem is niet voorhanden.

Wel mag van een NEN-norm worden verwacht dat, indien verschillende gebruikers deze toepassen, binnen zekere grenzen vergelijkbare resultaten worden verkregen. De interlaboratorium-reproduceerbaarheid is relatief groot, zeker in vergelijking tot wat binnen één laboratorium haalbaar is. Ook het feit dat bij ongeveer de helft van de deelnemers de resultaten niet goed in elkaar zijn om te rekenen, zoals besproken in paragraaf 5.4.4, duidt op een methodologisch probleem.

### 5.5.3 Aanbevelingen

De in dit project gevalideerde normtekst dient ter vervanging van de versie van januari 1987. In die versie is vastgelegd dat het telpreparaat een areïeke massa dient te hebben van  $100 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$ . In de huidige versie is deze voorwaarde vervallen en vervangen door de zinsnede dat de belading van het telbakje niet boven  $200 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  mag uitkomen. Deze vereenvoudiging is doorgevoerd omdat dit de snelheid van de analyse ten goede komt, hetgeen past binnen de doelstelling van deze screeningsmethode, maar tevens doordat kaliumpreparaten tot deze areïeke massa vrijwel geen verschillen in telresultaat laten zien. Dit mag dan voor deze preparaten het geval zijn, dit geldt niet wanneer zachtere bèta-stralers in het monster aanwezig zijn. In geval (ook binnen een zelfde laboratorium) verschillende volumina van hetzelfde monster in behandeling worden genomen, zal dit resulteren in verschillende uitkomsten.

In de nabespreking is nadrukkelijk stilgestaan bij dit probleem. De gebruikers van de norm waren van mening dat gezien de andere onzekerheden in deze bepalingsmethode het weinig zinvol is de nu gevalideerde normtekst opnieuw te gaan wijzigen. Dat de methode niet beter presteert is inherent aan de bepalingsmethode zelf.

Uit de validatie is tevens voortgekomen dat de normtekst nog een aantal onjuistheden bevat. Deze zijn hieronder kort weergegeven. De paragraafnummers verwijzen naar die in de norm.

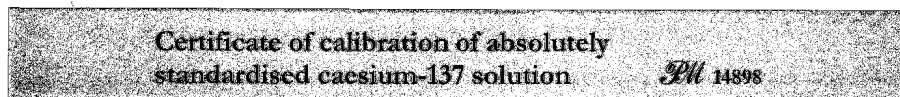
- In paragraaf 7.1.1 is een aantal passages opgenomen die op punten afwijken van dito teksten in concept-NEN 5627. Indien hiervoor geen reden is, wordt geadviseerd deze gelijk te maken.
- In paragraaf 7.2.1.1 wordt in de opmerking een afwijkende eenheid gebruikt.

- In paragraaf 7.2.1.4 geeft de eerste zin aan dat het (lege) bekerglas moet worden gewogen. In de norm wordt echter nergens gevraagd het bekerglas opnieuw te wegen. De betreffende zin kan daarom worden weggelaten.
- Bij RIZA worden grote telschalen gebruikt en ook het indampen van een watermonster kan geschieden in relatief zwaar en groot glaswerk. Daarom is destijds in de norm geen absolute waarde van de weegfout gegeven maar een relatieve waarde. Deze kan desgewenst naar beneden worden bijgesteld.

## 5.6 Bijlagen

### 5.6.1 Certificaat $^{137}\text{Cs}$ -oplossing

Amersham plc  
The Grove Centre



ISSUED BY: Amersham plc  
Radiation & Radioactivity  
Calibration Laboratory  
The Grove Centre  
White Lion Road  
Amersham  
Buckinghamshire  
HP7 9LL

ISSUED FOR: AEA Technology QSA GmbH  
Isotrak  
Gieselweg 1  
D-38110 Braunschweig  
Germany

Description Principal radionuclide: Caesium-137  
Daughter radionuclide: Barium-137m

Product code: CDZ24  
Solution number: S2/56/219

Measurement Reference time:

1200 GMT on 1 January 2003

Radioactive concentration of caesium-137:

4.042 kilobecquerels per gram of solution

which is equivalent to:

109.2 nanocuries per gram of solution

Mass of solution:

5.0551 grams

Total activity of caesium-137:

20.43 kilobecquerels

which is equivalent to:

552.3 nanocuries

Method of measurement used:

4 $\pi$  efficiency tracing using a liquid scintillation counter.

Calibration date(s): 6 January 2003 to 7 January 2003

The calibration date is provided for added information only, and must not be confused with the reference date. It is the reference date that must be used in all calculations relating to the values of activity.

Uncertainty Expanded uncertainty in the radioactive concentration quoted above:  $\pm 0.88 \%$

Combined Type A uncertainty:  $\pm 0.08 \%$

Combined Type B uncertainty:  $\pm 0.44 \%$

Approved  
Signatory

Date of  
issue

7<sup>th</sup> March 2005



B D D Singleton

Page 1 of 2 pages

This certificate is issued in accordance with the laboratory accreditation requirements of the United Kingdom Accreditation Service. It provides traceability of measurement to recognised national standards, and to units of measurement realised at the National Physical Laboratory or other recognised national standards laboratories. This certificate may not be reproduced other than in full, except with the prior written approval of the issuing laboratory.



# **Certificate of calibration of absolutely standardised caesium-137 solution**

*SM* 14898

UKAS ACCREDITED CALIBRATION LABORATORY No. 0146

**Radionuclidic Purity** The estimated activities of any radioactive impurities found by high-resolution gamma ray spectrometry, or in any other examination of the solution, are listed below expressed as percentages of the activity of the principal radionuclide at the reference time.

Strontium-90                      0.0001(1) %

**Chemical Composition** 0.1M HCl containing 100 micrograms of caesium per ml.

**Physical Data** Recommended half life: 30.00 ± 0.20 years                      (1 year = 365.25 days)

100% beta particle emission. (94.6 ± 0.3)% of the disintegrations are to the 0.662 MeV barium-137m level which decays to the ground state with a half life of 2.55 minutes. The internal conversion coefficient of the 0.662 MeV gamma transition is assumed to be 0.1121 ± 0.0005.

The ratio of the activity of barium-137m to the activity of caesium-137 is 0.946.

**Remarks** This product meets the quality assurance requirements for achieving traceability to NIST as defined in ANSI N42.22-1995.

Nuclear data quoted on this certificate are taken from the Joint European File, Version 2.2.

Tests made over a period of two years on standardised solutions of caesium-137 stored in glass ampoules have shown that loss of caesium-137 from solution is negligible other than by radioactive decay.

The uncertainty associated with the mass of the solution is ± 0.002 % and is included in the expanded uncertainty.

**Expression of Uncertainties** The reported expanded uncertainty is based on a standard uncertainty multiplied by a coverage factor  $k = 2.00$ , which for a  $t$ -distribution with  $v_{\text{eff}} = \infty$  effective degrees of freedom corresponds to a coverage probability of approximately 95 %. The uncertainty evaluation has been carried out in accordance with UKAS requirements.

Unless indicated, all other uncertainties are expressed at the confidence level associated with one standard uncertainty.

The format used for the uncertainties in the values of radionuclidic purity is illustrated in the following examples;

6.5(21)	=	6.5 ± 2.1
6.54(21)	=	6.54 ± 0.21
6.543(21)	=	6.543 ± 0.021

### 5.6.2 Analyseresultaten concept-NEN 6421 monster Wa

Code monster	Code deelnemer	meting 1 (Bq/l)	telfout ( %)	bèta-eff ( %)	meting 2 (Bq/l)	telfout ( %)	bèta-eff ( %)	meting 3 (Bq/l)	telfout ( %)	bèta-eff ( %)	gemiddelde (Bq/l)	<i>s</i> (Bq/l)	<i>vc</i> ( %)
Wa1	1	0,58	6,00	40,23	0,60	5,60	41,06	0,56	6,90	38,93	0,58	0,02	3,8
Wa2	2	0,57	1,70	39,40	0,55	1,80	39,40	0,58	1,70	39,40	0,57	0,01	2,6
Wa3	3	0,57	20,02	25,53	0,62	17,90	22,65	0,55	18,77	22,52	0,58	0,04	6,2
Wa4	4	1,10	13,00	36,43	1,00	19,00	36,43	0,60	20,00	36,43	0,90	0,26	29
Wa5	5	0,68	10,09	31,75	0,58	11,84	31,75	0,54	11,84	31,75	0,60	0,07	12
Wa6	6	0,47	3,90	68,80	0,46	3,90	68,50	0,44	4,00	69,40	0,45	0,01	2,9
Wa7	7	0,50	1,78	35,87	0,46	1,83	35,87	0,45	1,84	35,87	0,47	0,03	5,8
Wa8	8	0,44	29,16	28,90	0,31	43,75	28,20	0,49	29,27	28,20	0,41	0,09	22
Wa9	9	0,72	7,53	42,10	--	--	--	--	--	--	0,72	--	--
Wa10	10	1,73	14,52	48,07	1,29	18,91	49,25	1,35	10,58	47,31	1,5*	0,2	16

Gemiddeld 0,58

*s* 0,17

*vc* ( %) 28,9

*n* 25

\* Uitbijter

### 5.6.3 Analyseresultaten concept-NEN 6421 monster Wb

Code monster	Code deelnemer	meting 1 (Bq/l)	telfout ( % )	bèta-eff ( % )
Wb1	1	5,75	1,30	40,23
Wb2	2	6,74	0,50	39,40
Wb3	3	6,60	4,51	22,52
Wb4	4	6,58	3,50	36,43
Wb5	5	7,44	1,29	31,75
Wb6	6	5,44	0,90	68,80
Wb7	7	5,93	1,34	37,08
Wb8	8	8,47	4,42	28,20
Wb9	9	6,83	2,43	42,10
Wb10	10	6,96	3,71	50,19

meting 2 (Bq/l)	telfout ( % )	bèta-eff ( % )
5,96	1,20	41,06
7,02	0,50	39,40
5,18	4,60	25,53
6,51	3,40	36,43
7,51	1,27	31,75
5,24	1,00	68,50
5,74	1,34	37,08
7,54	4,73	28,20
--	--	--
7,58	3,57	48,17

meting 3 (Bq/l)	telfout ( % )	bèta-eff ( % )
6,42	1,30	38,93
6,87	0,50	39,40
5,16	4,85	23,60
6,82	3,30	36,43
7,76	1,25	31,75
5,38	0,90	69,40
5,50	1,34	37,08
7,97	4,58	28,20
--	--	--
8,04	3,42	47,62

gemiddelde (Bq/l)	s (Bq/l)	vc ( % )
6,0	0,3	5,6
6,9	0,1	2,0
5,6	0,8	15
6,6	0,2	2,4
7,6	0,2	2,2
5,4	0,1	1,9
5,7	0,2	3,7
8,0	0,5	5,8
6,8	--	--
7,5	0,5	7,2

Gemiddeld	6,6
s	1,0
vc (%)	14,6
n	28

#### 5.6.4 Analyseresultaten concept-NEN 6421 monster Wc

Code monster	Code deelnemer	meting 1 (Bq/l)	telfout ( % )	bèta-eff ( % )
Wc1	1	13,50	0,90	40,23
Wc2	2	14,79	0,36	39,40
Wc3	3	14,07	3,63	23,60
Wc4	4	14,80	2,50	36,43
Wc5	5	15,74	0,77	31,75
Wc6	6	11,97	0,90	68,80
Wc7	7	11,68	1,27	35,92
Wc8	8	14,16	3,93	28,20
Wc9	9	16,10	1,78	42,10
Wc10	10	14,64	2,00	47,95

meting 2 (Bq/l)	telfout ( % )	bèta-eff ( % )
14,00	0,90	41,06
14,75	0,36	39,40
12,39	3,57	25,53
13,70	2,60	36,43
15,61	0,77	31,75
11,83	0,90	68,50
11,84	1,27	35,92
15,35	3,78	27,90
--	--	--
12,79	2,17	49,95

meting 3 (Bq/l)	telfout ( % )	bèta-eff ( % )
14,31	0,90	38,93
14,35	0,36	39,40
13,23	3,74	22,65
13,40	2,70	36,43
15,31	0,77	31,75
11,92	0,90	69,40
11,51	1,27	35,92
13,63	3,95	28,70
--	--	--
15,35	1,89	48,88

gemiddelde (Bq/l)	s (Bq/l)	vc ( % )
13,9	0,4	2,9
14,6	0,2	1,7
13,2	0,8	6,3
14,0	0,7	5,3
15,6	0,2	1,4
11,9	0,1	0,6
11,7	0,2	1,4
14,4	0,9	6,1
16,1	--	--
14,3	1,3	9,3

Gemiddeld	13,8
s	1,4
vc (%)	10,0
n	28

### 5.6.5 Bewerkte analyseresultaten concept-NEN 6421

Ref.-waarde Cs-137 (Bq/l):

10,89

Ref.-waarde totaal (Bq/l):

18,49

Ref.-waarde K-40 (Bq/l):

8,50

Ref.-waarde Cs-137 (Bq/l):

10,00

Ref.-waarde K-40 (Bq/l):

8,50

Code deelnemer	Wb-Wa (Bq/l)	s (Bq/l)	vc ( %)	Onjuisth. ( %)
1	5,5	0,3	6,2	-50
2	6,3	0,1	2,2	-42
3	5,1	0,8	16,3	-53
4	5,7	0,3	5,4	-47
5	7,0	0,2	2,6	-36
6	4,9	0,1	2,1	-55
7	5,3	0,2	4,1	-52
8	7,6	0,5	6,3	-30
9	6,1	--	--	-44
10	6,1	0,6	9,8	-44

Gemiddeld 5,9 -45

s 0,9 8

n 10 10

Wc-Wa (Bq/l)	s (Bq/l)	vc ( %)	Onjuisth. ( %)
13,4	0,4	3,1	-28
14,1	0,2	1,7	-24
12,7	0,8	6,6	-32
13,1	0,8	6,0	-29
15,0	0,2	1,6	-19
11,5	0,1	0,7	-38
11,2	0,2	1,5	-39
14,0	0,9	6,4	-24
15,4	--	--	-17
12,8	1,3	10,5	-31

13,3 -28

1,4 7

10 10

Eff. Cs-137 (-)	Bijdrage Cs-137 (Bq/l)	K-40 gem. (Bq/l)	s (Bq/l)	Onjuistheid K-40 gem. ( %)	vc ( %)
0,502	5,0	8,3	0,5	-2	6
0,579	5,8	8,3	0,3	-3	3
0,465	4,7	8,0	1,1	-6	13
0,527	5,3	7,8	0,8	-8	10
0,640	6,4	8,6	0,3	1	3
0,450	4,5	7,0	0,1	-18	1
0,482	4,8	6,4	0,3	-25	3
0,696	7,0	7,0	1,0	-17	12
0,561	5,6	9,8	--	15	--
0,557	5,6	7,2	1,4	-15	17

0,546 -8

0,078 12

10 10

### 5.6.6 Nagezonden notitie met aanvullende vragen

#### notitie

aan : Deelnemers validatie concept-NEN 6421  
van : Peter de Jong  
betreft : Aanvullende vragen  
datum : 20 februari 2006  
referentie : K5098/06.072057 RE/PdJ/VL

Naar aanleiding van de op 24 januari jl. gehouden bespreking bij het RIVM inzake de validatie van concept-NEN 6421 verzoek ik u bijgaande vragen nog te willen beantwoorden. De file kunt u per mail terugsturen aan p.dejong@nrg-nl.com. De antwoorden zullen per deelnemerscode in het eindrapport worden opgenomen.

Alvast mijn dank voor uw medewerking.

Met vriendelijke groet,

Peter de Jong

#### Deelnemerscode (1-10):

#### Vraag 1: Op welke wijze heeft u de drievoudige analyse per watermonster uitgevoerd:

- ☐ Het ontvangen watermonster is geheel of gedeeltelijk drooggedampt, van het indamp-residu is één telpreparaat gemaakt dat vervolgens in drievoud is geteld.
- ☐ Het ontvangen watermonster is geheel of gedeeltelijk drooggedampt, van het indamp-residu is één telpreparaat gemaakt dat vervolgens in enkelvoud is geteld.
- ☐ Het ontvangen watermonster is geheel of gedeeltelijk drooggedampt, van het indamp-residu zijn drie afzonderlijke telpreparaten gemaakt, die elk afzonderlijk zijn geteld.
- ☐ Het ontvangen watermonster is gesplitst en in drievoud drooggedampt. Ieder residu is afzonderlijk geteld.
- ☐ Anders namelijk:

#### Vraag 2: Welke laagdikte (areïeke massa) hadden de telpreparaten:

Monster met code Wa:  $\text{g.m}^{-2}$   
Monster met code Wb:  $\text{g.m}^{-2}$   
Monster met code Wc:  $\text{g.m}^{-2}$

#### Vraag 3: Is in de gerapporteerde antwoorden rekening gehouden dat de watermonsters zijn aangezuurd? Conform de norm dienen de berekende gehalten daarom met een factor 1,03 te worden vermenigvuldigd. Heeft u deze factor in rekening gebracht:

- ☐ Ja
- ☐ Nee

### 5.6.7 Resultaten van de aanvullende vragen

Bij de uitwerking van de resultaten van het ringonderzoek is gebleken dat niet alle deelnemers de analyse op een zelfde wijze hebben uitgevoerd. Om de verschillen in kaart te brengen is na afloop een korte inventarisatie uitgevoerd. Onderstaand wordt een overzicht gegeven van de resultaten hiervan. De vragen zijn opgenomen in paragraaf 5.6.6.

Code deelnemer	Vraag1	Vraag 2 (g.m <sup>-2</sup> )			Vraag 3
		Wa	Wb	Wc	
1	antwoord d	200	200	200	nee
2	antwoord d	200	200	200	ja
3	antwoord d	200	200	200	ja
4	antwoord c	134-199	189-200	189-199	ja
5	antwoord d	14,6	14,6	19,2	ja
6	antwoord a	149	178	210	nee
7	antwoord a	225,5	212,1	451,0	nee
8	antwoord a	181,2	175,6	173,1	ja
9	antwoord b	100	100	100	nee
10	antwoord e <sup>*</sup>	<200	<200	<200	ja

- In drievoud is een exacte hoeveelheid in een telbakje drooggedampt en geteld.





## 6. Commentaar van deelnemers aan interlaboratorium-validatie

In de onderstaande paragrafen wordt het belangrijkste commentaar van de deelnemers weergegeven dat tijdens de nabespreking van de intervalidatieronderzoeken naar voren is gekomen.

Verder is redactioneel commentaar ontvangen van dhr. R. Zwart (NEN), en zowel inhoudelijk als redactioneel commentaar van dhr. GJ Knetsch (RIVM).

### 6.1 Concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627

1. In de tekst toelichten waarom de homogeniteitstest uitgevoerd is met gammaspectrometrie en met deelmonsters van 4,0 g, terwijl de analyses uitgevoerd worden met gasdoorstroomtelling en met deelmonsters van 100-200 mg.
2. In de grafieken ook de referentiewaarde aangeven.
3. In de tekst bij concept-NEN 5622 aangeven dat de telefficiëntie voor totaal alfa naar verwachting laag is: 2-4 %
4. In de tabellen de herhaalbaarheid en reproduceerbaarheid relatief weergeven en het aantal laboratoria aangeven.
5. In de bespreking van de totaal alfa-resultaten aangeven dat enkele laboratoria problemen hadden bij het bepalen van de juiste telefficiëntie.
6. Bekijken of de tekst betreffende alfa naar bèta spill-over helder genoeg is of dat er een informatieve bijlage aan toegevoegd moet worden.
7. De bijlage in concept-NEN 5627 betreffende de absorptie van bèta's heeft betrekking op de afschermende werking van de huid en heeft niets te maken met de voorliggende problematiek. De bijlage moet weg of de tekst moet aangepast worden met bijvoorbeeld een relevante curve bij meerdere absorptiediktes.
8. In de conclusies moeten de beweringen met  $\mu \pm 2s$  weggelaten worden. De conclusie dient zich tot de prestatiekenmerken van deze methode te beperken.

### 6.2 Concept-NEN 5636

De filterkalibratie heeft bij de deelnemers aan het ringonderzoek aanleiding gegeven tot verwarring. De tekst 'geometrisch gelijk' kan geïnterpreteerd worden als identiek aan een oneindig dunne bron, of als een zo adequaat mogelijke benadering van de dagelijkse praktijk. De tekst zal zodanig aangepast worden dat er een ondubbelzinnige en heldere methode voorligt.

De laatste zin in concept-NEN 5636, paragraaf 3 'Beginsel' zal wellicht elders geplaatst worden.

### **6.3 Concept-NEN 6421**

1. Het evalueren van de resultaten van de deelnemers werd gecompliceerd door het feit dat het analyseren in triplo niet door alle deelnemers op een gelijke wijze is uitgevoerd.
2. Het aanzuren van de monsters met 3 %  $\text{HNO}_3$  is onterecht niet in de aanbiedingsbrief van RIVM vermeld. P. de Jong zal bezien of de resultaten met een factor 1,03 gecorrigeerd moeten worden.
3. Het voorstel voor een uniforme laagdikte in plaats van een laagdikte tot maximaal  $200 \text{ g}\cdot\text{m}^{-2}$  is na enige discussie door de deelnemers verworpen. De methode geldt voor bètastralers onafhankelijk van de laagdikte en is daarmee zeer eenvoudig in uitvoering. Met name voor watermonsters met een zeer lage zoutrest zou het streven naar een uniforme laagdikte veel meerwerk betekenen.

## 7. Slotconclusies

### 7.1 Voldoen de resultaten van het validatieonderzoek ?

De prestatiekenmerken van de in dit rapport besproken (voor)normen zijn in een intra- en interlaboratorium-validatieonderzoek bepaald. Daarmee zijn de onzekerheden van de gevolgde normvoorschriften adequaat beschreven. Men dient zich bij deze normvoorschriften terdege te realiseren dat de activiteit van een onbekend praktijkmonster wordt weergegeven in  $^{241}\text{Am}$ -,  $^{40}\text{K}$ - of  $^{90}\text{Sr}$ -equivalenten. Het onbekende praktijkmonster kan echter geheel andere radionucliden bevatten. Het feit dat het normvoorschrift exact is gevolgd kan dus in praktijk een heel goede overeenstemming met de referentiewaarde, of een significante afwijking van de referentiewaarde opleveren, afhankelijk van het in het betreffende monster aanwezige nuclide.

De bepaling van de totaal alfa-activiteit wordt gecompliceerd door het feit dat een deel van de alfa-deeltjes in het monster afgeremd wordt voordat de detector bereikt is. Aangezien het praktijkmonster qua dichtheid en structuur kan verschillen van het kalibratiepreparaat zal de bepaling van totaal alfa-activiteit gepaard gaan met een grote experimentele onzekerheid. Dit wordt geïllustreerd uit de resultaten van de validatie van concept-NEN 5622: zowel het kalibratiepreparaat als het monster bestaan beide uit  $\text{CaSO}_4$  hetgeen een (geringe) reproduceerbaarheid van 13 % tot gevolg heeft. Bij concept-NEN 5636 is er een groot verschil tussen monster en kalibratiepreparaat waardoor de reproduceerbaarheid kan oplopen tot 50 %. Dit is een praktisch gegeven.

Bij de bepaling van de totaal bèta-activiteit telt het verschil tussen kalibratiemonster en praktijkmonster minder, maar wel het verschil in bèta-energie tussen de bètastraler in het kalibratiemonster ( $^{40}\text{K}$ ) en in het praktijkmonster ( $^{137}\text{Cs}$ ). Hierdoor kan een grote systematische afwijking optreden in de orde van 45 %. Ook dit is een onontkoombaar praktisch gegeven inherent verbonden aan de meetmethodiek.

Bij het beoordelen van de resultaten van dit validatieonderzoek dient het uiteindelijke doel van de onderzochte normvoorschriften, het screenen van een monster op totaal alfa-activiteit of totaal bèta-activiteit, voor ogen gehouden te worden. Bij afwijkende resultaten zal het betreffende monster via andere meetmethoden nader worden geanalyseerd. In het licht van het bovenstaande mag geconcludeerd worden dat de behaalde validatieresultaten voldoende zijn voor de toepassing van de normteksten in de praktijk.

In de onderstaande tabellen wordt een overzicht gegeven van de verkregen prestatiekenmerken.

## 7.2 Concept-NEN 5622 en concept-NEN 5627

Tabel 39 Prestatiekenmerken van concept-NEN 5622

Parameter	Monster <sup>a</sup>		
	1	2	3
aantal deelnemende laboratoria	7	7	7
aantal bepalingen per laboratorium	3	3	3
aantal geëlimineerde laboratoria	2	2	2
gemiddelde meetresultaat ( $\bar{a}_m$ ), in Bq/g	2,56	49,39	48,28
ware waarde, in Bq/g	2,76	53,99	55,74
herhaalbaarheidsstandaardafwijking ( $s_r$ ), in Bq/g	0,10	2,01	2,19
herhaalbaarheidsvariatiecoëfficiënt ( $vc_r$ ), in %	4,0	4,1	4,5
herhaalbaarheidslimiet ( $r$ ), in Bq/g	0,29	5,64	6,13
reproduceerbaarheidsstandaardafwijking ( $s_R$ ), in Bq/g	0,34	5,00	5,96
reproduceerheidsvariatiecoëfficiënt ( $vc_R$ ), in %	13,2	10,1	12,4
reproduceerbaarheidslimiet ( $R$ ), in Bq/g	0,95	14,01	16,70
systematische afwijking ( $\delta$ ), in Bq/g	-0,20	-4,61	-7,46
aantoonbaarheidsgrens ( $AG_r$ ), in Bq/g;	0,20	0,20	0,20
<sup>a</sup> monster 1: CaSO <sub>4</sub> -poeder met een lage alfa-activiteit ((2,76 ± 0,06) Bq/g) monster 2: CaSO <sub>4</sub> -poeder met een hoge alfa-activiteit ((54,0 ± 1,2) Bq/g) monster 3: CaSO <sub>4</sub> -poeder met een hoge alfa-activiteit ((55,7 ± 1,2) Bq/g) en een bèta-activiteit (zie NEN 5627).			

Tabel 40 Prestatiekenmerken van concept-NEN 5627

Parameter	Monster <sup>a</sup>		
	1	2	3
aantal deelnemende laboratoria	8	8	7
aantal bepalingen per laboratorium	3	3	3
aantal geëlimineerde resultaten	0	0	4
gemiddelde meetresultaat ( $\bar{a}_m$ ), in Bq/g	10,48	37,48	5,26
ware waarde, in Bq/g	11,97	43,65	4,39
herhaalbaarheidsstandaardafwijking ( $s_r$ ), in Bq/g	0,21	0,75	0,12
herhaalbaarheidsvariatiecoëfficiënt ( $v_{c_r}$ ), in %	2,0	2,0	2,4
herhaalbaarheidslimiet ( $r$ ), in Bq/g	0,58	2,10	0,35
reproduceerbaarheidsstandaardafwijking ( $s_R$ ), in Bq/g	0,30	1,13	0,82
reproduceerheidsvariatiecoëfficiënt ( $v_{c_R}$ ), in %	2,9	3,0	15,7
reproduceerbaarheidslimiet ( $R$ ), in Bq/g	0,85	3,16	2,31
systematische afwijking ( $\delta$ ), in Bq/g	-1,49	-6,17	0,87
aantoonbaarheidsgrens ( $AG_r$ ), in Bq/g;	0,046	0,046	0,046
<sup>a</sup> monster 1: CaSO <sub>4</sub> -poeder met KCl en <sup>90</sup> Sr, een lage bèta-activiteit ((12,0 ± 0,3) Bq/g) monster 2: CaSO <sub>4</sub> -poeder met KCl en <sup>90</sup> Sr, een hoge bèta-activiteit ((43,7 ± 1,0) Bq/g) monster 3: CaSO <sub>4</sub> -poeder met <sup>90</sup> Sr, een lage bèta-activiteit ((4,4 ± 0,1) Bq/g) en een alfa-activiteit (zie NEN 5622)			

### 7.3 Concept-NEN 5636

De prestatiekenmerken van concept-NEN 5636 zijn samengevat in Tabel 41 en Tabel 42. Deze zijn onderverdeeld naar glasvezel en membraanfilters, de in de norm genoemde filtertypen. De onjuistheid wordt alleen genoemd voor bèta-metingen en is afgeleid voor <sup>137</sup>Cs.

Tabel 41 Overzicht prestatiekenmerken concept-NEN 5636; totaal alfa-activiteit

Parameter	monster 1 <sup>a</sup>	monster 2
aantal deelnemende laboratoria	6	6
aantal bepalingen per laboratorium	2	2
aantal geëlimineerde resultaten	1	1
gemiddelde meetresultaat ( $\bar{A}_m$ ), in Bq	22,9	22,8
ware waarde, in Bq	31,02	30,9
herhaalbaarheidsstandaardafwijking ( $s_r$ ), in Bq	0,93	1,14
herhaalbaarheidsvariatiecoëfficiënt ( $vc_r$ ), in %	4,0	4,9
herhaalbaarheidslimiet ( $r$ ), in Bq	2,60	3,19
reproduceerbaarheidsstandaardafwijking ( $s_R$ ), in Bq	0,67	1,28
reproduceerbaarheidsvariatiecoëfficiënt ( $vc_R$ ), in %	2,9	5,6
reproduceerbaarheidslimiet ( $R$ ), in Bq	1,88	3,58
systematische afwijking ( $\delta$ ), in Bq	-8,0	-8,2
aantoonbaarheidsgrens ( $AG_r$ ), in Bq	0,022	0,014
<sup>a</sup> monster 1: glasvezelfilter beladen met $^{241}\text{Am}$ ( $31,02 \pm 0,09$ Bq) en met $^{137}\text{Cs}$ ( $46,3 \pm 0,11$ Bq) monster 2: membraanfilter beladen met $^{241}\text{Am}$ ( $30,9 \pm 0,2$ Bq) en met $^{137}\text{Cs}$ ( $45,6 \pm 0,4$ Bq)		

Tabel 42 Overzicht prestatiekenmerken concept-NEN 5636; totaal bèta-activiteit

Parameter	monster 1 <sup>a</sup>	monster 2
aantal deelnemende laboratoria	6	6
aantal bepalingen per laboratorium	2	2
aantal geëlimineerde resultaten	1	1
gemiddelde meetresultaat ( $\bar{A}_m$ ), in Bq	35,2	42,4
ware waarde, in Bq	46,3	45,6
herhaalbaarheidsstandaardafwijking ( $s_r$ ), in Bq	0,63	1,31
herhaalbaarheidsvariatiecoëfficiënt ( $vc_r$ ), in %	1,5	3,0
herhaalbaarheidslimiet ( $r$ ), in Bq	1,76	4,11
reproduceerbaarheidsstandaardafwijking ( $s_R$ ), in Bq	4,6	5,9
reproduceerbaarheidsvariatiecoëfficiënt ( $vc_R$ ), in %	13	14
reproduceerbaarheidslimiet ( $R$ ), in Bq	13,4	15,5
systematische afwijking ( $\delta$ ), in Bq	-11,1	-3,3
aantoonbaarheidsgrens ( $AG_r$ ), in Bq	0,074	0,081
<sup>a</sup> monster 1: glasvezelfilter beladen met $^{241}\text{Am}$ ( $31,0 \pm 0,09$ Bq) en met $^{137}\text{Cs}$ ( $46,3 \pm 0,11$ Bq) monster 2: membraanfilter beladen met $^{241}\text{Am}$ ( $30,9 \pm 0,2$ Bq) en met $^{137}\text{Cs}$ ( $45,6 \pm 0,4$ Bq)		

## 7.4 Concept-NEN 6421

De prestatiekenmerken van concept-NEN 6421 zijn samengevat in Tabel 43 en 44.

*Tabel 43 Overzicht prestatiekenmerken concept-NEN 6421; precisie*

Parameter	Monster <sup>a,b</sup>		
	1	2	3
Aantal deelnemende laboratoria	10	10	10
Aantal bepalingen per laboratorium	1-3	1-3	1-3
Aantal geëlimineerde laboratoria	1	0	0
Gemiddeld meetresultaat ( $\bar{c}_A$ ), in Bq/l	0,58	6,6	13,8
Ware waarde, in Bq/l	-	-	-
Interlaboratoriumreproduceerbaarheidsstandaardafwijking ( $s_R$ ), Bq/l	0,17	1,0	1,4
Interlaboratoriumreproduceerbaarheidsvariatiecoëfficiënt ( $vc_R$ ), in %	29	15	10
Interlaboratoriumreproduceerbaarheidslimiet ( $R$ ), in Bq/l	0,48	2,8	3,9
Aantoonbaarheidsgrens ( $AG_t$ ), in Bq/l bij een teltijd van 3600 s	0,035	-	-
Aantoonbaarheidsgrens ( $AG_t$ ), in Bq/l bij een teltijd van 14.400 s	0,019	-	-
Aantoonbaarheidsgrens ( $AG_t$ ), in Bq/l bij een teltijd van 60.000 s	0,012	-	-
<sup>a</sup> monster 1 : Waalwater monster 2 : Als monster 1 met toevoeging van $(10,89 \pm 0,05)$ Bq/l aan bèta-activiteit ( $^{137}\text{Cs}$ ) monster 3 : Als monster 1 met toevoeging van $(10,00 \pm 0,05)$ Bq/l aan bèta-activiteit ( $^{137}\text{Cs}$ ) en $(8,50 \pm 0,02)$ Bq/l aan bèta-activiteit ( $^{40}\text{K}$ ) <sup>b</sup> - : Niet bepaald			

*Tabel 44 Overzicht prestatiekenmerken concept-NEN 6421; juistheid*

Parameter	Monster <sup>a</sup>	
	2 (cor.)	3 (cor.)
Aantal deelnemende laboratoria	10	10
Aantal bepalingen per laboratorium	1-3	1-3
Aantal geëlimineerde laboratoria	0	0
Gemiddeld meetresultaat ( $\bar{c}_A$ ), in Bq/l	5,9	13,3
Ware waarde, in Bq/l	10,9	18,5
Terugvinding, in %	55	72
<sup>a</sup> monster 2 (gecorrigeerd): resultaten van monster 2 na correctie voor de bijdrage van monster 1 monster 3 (gecorrigeerd): resultaten van monster 3 na correctie voor de bijdrage van monster 1		