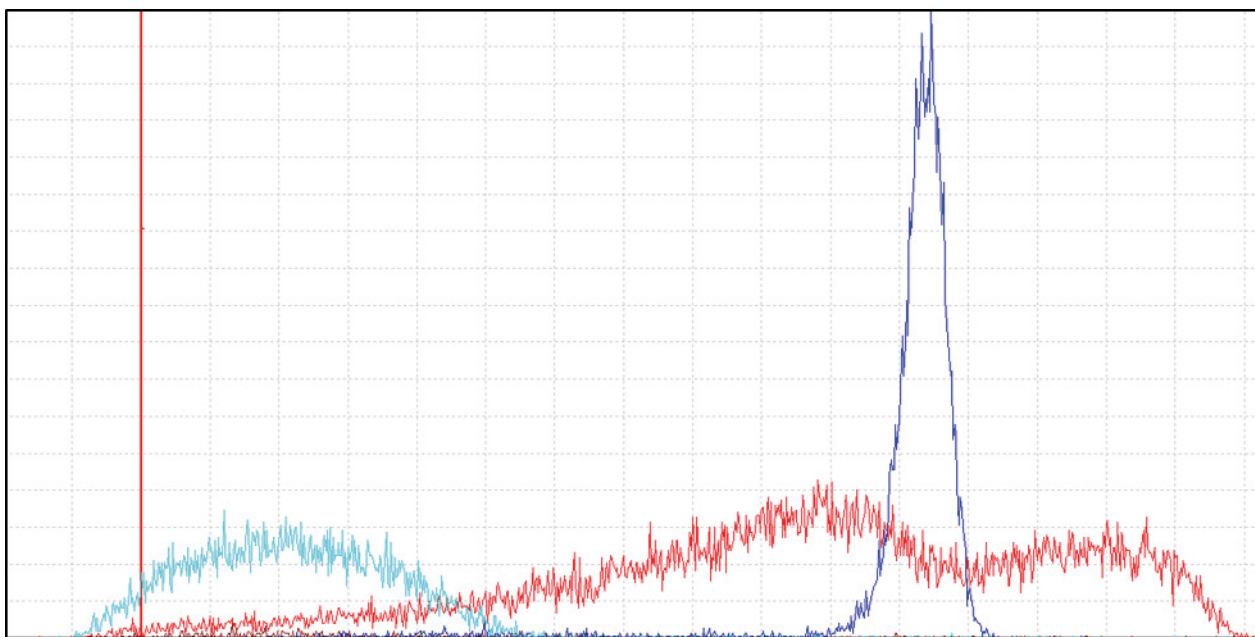


Vätskescintillationsmätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet vid låga alfa/betaaktivitetskvoter

KARL NORLIN, HENRIK RAMEBÄCK, ANNIKA TOVEDAL



Karl Norlin, Henrik Ramebäck, Annika Tovedal

Vätskescintillationsmätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet vid låga alfa/beta- aktivitetskvoter

Titel	Vätskescintillationsmätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet vid låga alfa/beta-aktivitetskvoter
Title	Liquid scintillation counting of gross alpha and gross beta in samples with low alpha/beta activity ratios
Rapportnr/Report no	FOI-R--5222--SE
Månad/Month	Januari
Utgivningsår/Year	2022
Antal sidor/Pages	43
ISSN	1650-1942
Kund/Customer	Försvarsdepartementet
Forskningsområde	CBRN-frågor
FoT-område	Inget FoT-område
Projektnr/Project no	A400321
Godkänd av/Approved by	Åsa Scott
Ansvarig avdelning	CBRN-skydd och säkerhet

Bild/Cover: FOI

Detta verk är skyddat enligt lagen (1960:729) om upphovsrätt till litterära och konstnärliga verk, vilket bl.a. innebär att citering är tillåten i enlighet med vad som anges i 22 § i nämnd lag. För att använda verket på ett sätt som inte medges direkt av svensk lag krävs särskild överenskommelse.

This work is protected by the Swedish Act on Copyright in Literary and Artistic Works (1960:729). Citation is permitted in accordance with article 22 in said act. Any form of use that goes beyond what is permitted by Swedish copyright law, requires the written permission of FOI.

Sammanfattning

Mätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet med vätskescintillationsräkning är en metod som bl.a. används som screeningmetod för dricksvatten. Genom att tillämpa så kallad pulsformsanalys kan instrument skilja på pulser från alfa- respektive betastrålning. Dock förekommer felklassificering, dvs. att pulser från det ena partikelslaget felaktigt klassas som det andra. Vanligen genomförs mätningar där de två felklassificeringarna (alfa som beta och beta som alfa) är lika, vilket benämns optimum. Detta kan dock ge begränsningar i vilka alfa/beta-aktivitetskvoter som kan mätas med en rimlig mätosäkerhet. Vill man kunna mäta vid låga, eller höga, aktivitetskvoter skulle det istället vara bättre att ytterligare undertrycka felklassificeringen av den aktivitet som dominerar. Om det finns betydligt mer beta- än alfaaktivitet skulle en minskad betafelklassificering innebära att det går att mäta en lägre alfa/beta-aktivitetskvot än vid det så kallade optimumet.

I detta arbete har kalibreringar genomförts vid olika diskrimineringsnivåer för ett antal alfa- och betastrålande radionuklider. Kalibreringarna låg till grund för bestämning av mäteffektiviteter och felklassificeringsfaktorer.

Vidare validerades metoden i syfte att studera dess känslighet för parametrar som bedömts vara svåra att fullt ut kontrollera i ett prov. Metoden studerades också med avseende på mätosäkerhet som funktion av alfa/beta-aktivitetskvot. Detta gjordes för att kunna fastställa inom vilket aktivitetskvotsintervall metoden resulterar i rimliga mätosäkerheter för de två totalaktiviteterna. Slutligen jämfördes osäkerhetspropagering med Monte Carlo-beräkning för att studera hur aktivitetsfördelningarna avviker från normalfördelning och hur det skulle kunna påverka ett mätresultat.

Arbetet resulterade i en metod med en acceptabel mätosäkerhet för prov med måttlig quench ($SQPE > 740$) och med alfabetakvoter från ca 0,001 till ca 10. I den beräknade sammanlagda mätosäkerheten inkluderas en korrektion för systematiska avvikelser som kan vara svåra eller omöjliga att kontrollera.

Nyckelord: totalalfaaktivitet, totalbetaaktivitet, vätskescintillationsräkning, LSC, felklassificering, validering, mätosäkerhet, GUM, Monte Carlo

Summary

Measurement of gross alpha and gross beta activity using liquid scintillation counting is a screening method used for *e.g.* drinking water. By the use of pulse shape analysis an instrument can discriminate pulses caused by alpha particles from pulses caused by beta particles. However, misclassification (also called spillover) occurs, *i.e.* one of the pulse types are wrongly analysed as the other one and *vice versa*. Measurements are usually done for instrument settings where the alpha and beta spillover are equal. This is referred to as optimum. However, this instrument setting may restrict the alpha/ beta activity ratios that can be measured with a measurement uncertainty that would be fit-for-purpose. If measurements are to be done at low- or high activity ratios, it would be better to further lower the misclassification from the most abundant pulse type. For example, if a sample contains much more beta than alpha activity, a further decreased beta misclassification would then facilitate that a lower gross alpha/gross beta activity ratio could be measured.

In this work, calibrations at different discrimination levels were done for some alpha and beta emitting radionuclides, which then formed the basis for modelling misclassification factors and measurement efficiencies.

Furthermore, the method was validated concerning sensitivity for parameters that might be difficult to control in samples. The method was also studied with respect to uncertainty modelling as a function of the gross alpha/gross beta activity ratio, resulting in the lowest and highest activity ratio for which the method would result in measurement uncertainties that could be used for decision-making. Finally, uncertainty propagation was compared with Monte Carlo calculation in order to study deviations in the resulting activity distributions.

The work resulted in a method with acceptable measurement uncertainties for samples where the quench levels are not too high ($SQPE > 740$) and for alpha/beta activity ratios from about 0.001 to about 10. The calculated measurement uncertainty includes correction for systematic deviation caused by sample parameters that might be difficult to control in a measurement.

Keywords: gross alpha, gross beta, liquid scintillation counting, LSC, spillover, validation, measurement uncertainty, GUM, Monte Carlo

Innehållsförteckning

1	Inledning	7
1.1	Bakgrund.....	7
1.2	Syfte.....	8
2	Teori.....	9
2.1	Pulsformsanalys, PSA (Pulse Shape Analysis).....	9
2.2	Modellekvationer	10
2.2.1	Effektivitetsmodellen (ε -modell)	10
2.2.2	Felklassificeringsmodellen (τ -modell)	11
2.3	Osäkerhetsmodellering	13
2.3.1	Beräkning av sammanlagd osäkerhet.....	13
2.3.2	Modellering av τ_α och τ_β	14
2.3.3	Modellering av ε_β	15
3	Material och metod.....	17
3.1	Allmänt	17
3.2	Reagens.....	17
3.3	Mätinstrument och inställningar.....	17
3.3.1	Puls amplitude comparator (PAC)	17
3.3.2	Coincidence bias	18
3.3.3	Alfa- och betafönster.....	18
3.4	Parametrar låsta i försöken	19
3.4.1	Scintillationsburk.....	19
3.4.2	Scintillationsvätska och volymer	20
3.4.3	Nitratkoncentrationen och pH i provmatrisen	20
3.5	Quench.....	20
3.6	Alfa- och betafelklassificering och bestämning av PSA-värde.....	21
3.7	Effektivitetskalibrering	21
3.8	Aktivitetskvoter	22
3.9	Validering av metodens prestanda	23
4	Resultat och diskussion	24
4.1	Felklassificeringsfaktorer och mäteffektiviteter samt aktivitetsmätning vid olika aktivitetskvoter.....	24
4.1.1	Felklassificeringskurvor och felklassificeringsfaktorer.....	24
4.1.2	Effektivitetskalibrering	27
4.1.3	Scintillationsvätskor- UGAB+UGF vs UGAB.....	27
4.1.4	Mätning vid olika alfa/beta-aktivitetskvoter.....	28
4.2	Modellering av ε_α , ε_β , τ_α och τ_β	31
4.3	Validering av metodens prestanda	32
4.3.1	Systematisk avvikelse- totalalfa	32
4.3.2	Systematisk avvikelse - totalbeta	34

4.4	Mätosäkerhetsmodellering	35
4.4.1	Monte Carlo-beräkning av mätosäkerhet.....	36
5	Slutsatser	38
6	Fortsatt arbete	39
7	Referenser	40
8	Bilaga 1- Metodbeskrivning.....	42
8.1	Provberedning och instrumentinställningar	42
8.2	Kalibrering.....	42
8.3	Beräkna aktivitet	43
8.4	Begränsningar.....	43

1 Inledning

Mätning av totalalfa/totalbeta-aktivitet med vätskescintillationsräkning (LSC) är en screeningmetod som används för att besluta om även nuklidspecifika mätningar behöver göras. Metoden används till exempel för att mäta naturligt förekommande radioaktiva ämnen i dricksvatten [ISO 2018, SLV 2017]. På FOI används metoden i huvudsak för att undersöka förekomsten av radioaktiva ämnen i prover som misstänks innehålla farliga ämnen (CBRN, dvs. kemiska-, biologiska-, radioaktiva ämnen eller kärnämnen). I ett beredskapsläge med ett omfattande radioaktivt nedfall från en reaktorolycka eller en kärnladdningsexplosion, kommer det att på kort tid behöva mätas ett stort antal prov från vattenverk för att besluta om dricksvattnet är tjänligt. Denna screeningmetod har då potential att kunna leverera resultat snabbt.

I det radioaktiva nedfallet efter en kärnkraftsolycka eller en kärnvapenexplosion kommer betaaktiviteten att dominera över alfaaktiviteten med flera storleksordningar inom överskådlig tid [JOH 2017; GLA 1977]. Även i prover med naturlig radioaktivitet kommer betaaktiviteten att vara dominerande. Till exempel har totalalfa/totalbeta-aktivitetskvoten i dricksvatten från svenska vattenverk, med grundvatten som råvattenkälla, uppmätts till 0,1-0,5 i 28 av 29 vattenverk [FAL 2004]. Med tanke på detta, är det viktigt att metoden fungerar vid låga totalalfa-/totalbetaaktivitetskvoter. Utöver detta är alfastrålning mer radiotoxiskt än betastrålning, vilket avspeglas i de rekommenderade riktvärden som finns för screening av dricksvatten: 0,5 Bq/l totalalfa respektive 1 Bq/l totalbeta [WHO 2017] och 0,1 Bq/l totalalfa respektive 1 Bq/l totalbeta¹ [EU 2013]. Till detta kan läggas Rådets gränsvärde för flytande livsmedel efter en radiologisk nödsituation: 20 Bq/l (alfastrålande isotoper) respektive 125 Bq/l (strontiumisotoper) [EU 2016]. Alfastrålningens radiotoxicitet gör det särskilt viktigt att totalalfaaktiviteten inte underskattas. I screeningmetoden finns en viss sannolikhet att betastrålning registreras som alfastrålning och vice versa (alfa- och betafelklassificering) vilket då måste hanteras för att metoden ska fungera tillfredställande.

1.1 Bakgrund

Mätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet är förknippat med ett flertal svårigheter. Ett exempel som indikerar detta är resultat från en jämförelsemätning, där rapporterade mätresultat för både totalalfa- och totalbetaaktivitet varierade flera storleksordningar, och i åtminstone ett par europeiska länder (Österrike och Schweiz²) anses metoder för mätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet vara så otillförlitliga att de inte tillämpas för kontroll av dricksvatten [JOB 2015].

Principen för mätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet med LSC bygger på att ljuspulser som genereras av de emitterade alfa- och betapartiklarna skiljer sig åt i sin tidskaraktäristik. Genom pulsformsanalys kan instrumentet diskriminera mellan ljuspulser genererade av de två partikelslagen. Denna diskriminering är inte perfekt utan en viss felklassificering förekommer alltid, dvs. att pulser genererade av en betapartikel med en viss sannolikhet kommer att klassificeras som orsakad av en alfapartikel och tvärtom. Magnituden på felklassificering varierar dessutom med diskrimineringsinställningen, som kan varieras. Oavsett hur hög eller låg diskriminering som väljs kommer felklassificeringen att påverkas av ett antal faktorer som kan variera mellan kalibrering och det prov som ska mätas. Dessa faktorer kan dessutom vara svåra eller omöjliga att kontrollera. Exempel på faktorer som kan inverka på felklassificeringen, men även mäteffektiviteten, är vilken radionuklid som mäts; nitratkoncentrationen om ett prov surgörs med salpetersyra; och quench. Även om sönderfallssättet (alfa- eller beta-

¹ I totalbetaaktivitet exkluderas ³H och ⁴⁰K [PAS 1994, WHO 2017].

² Hur situationen år 2021 är inte känt, men i artikeln från 2015 nämner man detta.

sönderfall) är samma, kan magnituden på felklassificering vara olika beroende på radionuklid [RUS 2006, ZAP 2012, DeV 2007]. Mäteffektiviteten för betastrålare är dessutom en funktion av $E_{\beta\max}$ [GAC 2017]. Eftersom ett prov kan innehålla betastrålare med stor variabilitet i $E_{\beta\max}$ är det rimligt att inkludera detta i kalibreringen, vilket annars skulle kunna resultera i systematiska avvikelser för totalbetaaktiviteten.

Nitratkoncentration och quench kommer inverka på ljuspulsernas tidskaraktäristik, vilket vidare inverkar på felklassificering. Om nitratkoncentration och quench inte är samma för ett prov som de var för kalibreringen kommer alltså kalibreringen inte vara giltig för provet. Ett sätt att hantera detta är försöka hålla bl.a. dessa parametrar så konstanta som möjligt mellan prov och kalibrering, samt att uppskatta deras inverkan på mätresultaten.

Ytterligare en försvårande faktor i totalalfa- och totalbetaaktivitetsmätningar är då den ena av aktiviteterna är mycket större än den andra. Vid extrema alfa/beta-aktivitetskvoter inser man att korrektionen för felklassificering av den dominerande aktiviteten kan bli av samma storleksordning eller t.o.m. större än den lägre aktiviteten. Eftersom denna korrektion är behäftad med osäkerheter inses då vidare att osäkerheten i mätresultatet av den aktivitet som är låg kan bli väldigt stor (eftersom man subtraherar två tal som kan vara ungefär lika stora och som båda är behäftade med osäkerheter). Ett sätt att kunna mäta väldigt höga, eller låga, alfa/beta-aktivitetskvoter är då att minska felklassificeringen av den dominerande aktivitetstypen så att korrektionen blir mindre.

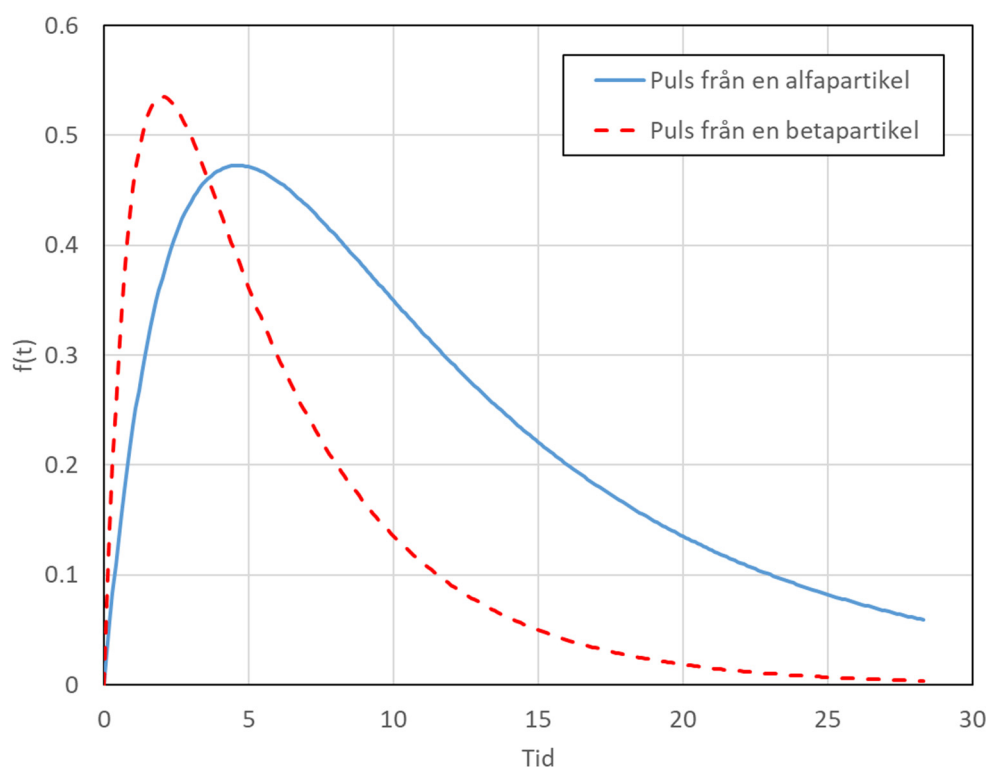
1.2 Syfte

Ett syfte med detta arbete var att utveckla en metod som minskar felklassificeringen av betapulser tillräckligt mycket och som har potentialen att fungera som screeningmetod för dricksvatten när man förväntar sig prover med betydligt högre beta- än alfaaktivitet. Ett annat syfte var att förvärva grundläggande kunskaper om metodens prestanda genom att undersöka på vilket sätt ett antal faktorer (exempelvis radionuklid, nitratkoncentration och quench) påverkar mätresultatet inklusive mätosäkerheten, samt att beräkna den maximala systematiska avvikelsen, det vill säga hur fel ett mätresultat kan bli inom intervallen för de givna faktorerna. Den beräknade systematiska avvikelsen kan senare tillämpas som en korrektionsfaktor för att erhålla ett mer korrekt mätresultat, om än med en högre mätosäkerhet.

2 Teori

2.1 Pulsformsanalys, PSA (Pulse Shape Analysis)

Vid samtidig mätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet vill man skilja mellan pulser orsakade av alfa- respektive betapartiklar. Pulsformsanalys, PSA, erbjuder denna möjlighet vid mätning med exempelvis LSC. Principen för PSA bygger på att alfapartiklar i större utsträckning exciterar lösningsmedlet till ett tripplett tillstånd medan betapartiklar exciterar lösningsmedlet till ett singlett tillstånd [WAL 2002] (olika kvanttillstånd i en molekyl)³. Då tidskonstanten för deexcitering från de två kvanttillstånden är olika kommer pulsernas tidskaraktäristik att vara annorlunda, se figur 1. Pulser som klassificerats som alfa-händelser kommer då att sparas i alfa-MCA⁴, och pulser som klassificerats som beta-händelser i beta-MCA.



Figur 1. Principen för pulsformsanalys bygger på att pulserna orsakade av alfa- respektive betapartiklar har olika tidskaraktäristik och därigenom kan PSA-kretsen i instrumentet diskriminera de olika partikelslagen.

Diskrimineringsnivån (PSA-värdet för ett vätskescintillationsinstrument från Perkin Elmer/Wallac) kan ställas in för mer eller mindre hård diskriminering av ett av partikelslagen. Vid ett lågt PSA-värde kommer en stor andel av pulserna orsakade av betapartiklar att felklassificeras som alfa-händelser, medan vid ett högt PSA-värde blir felklassificeringen av alfa-pulser stor. Vanligen önskar man att minimera felklassificeringen av båda typer, s.k. optimering (där de två typerna av felklassificering är lika). Dock kommer magnituden, och osäkerheten, av felklassificeringarna att vara

³ Primärt sker alltså energiöverföring till lösningsmedlet som senare avger energin till scintillationsmolekylerna.

⁴ MCA: *Multi Channel Analyzer* (mångkanalsanalysator).

gränssättande för spannet alfa/beta-aktivitetskvoter man kan mäta. Om behov finns att öka eller minska detta spann skulle man kunna mäta vid ett PSA-värde som resulterar i tillräckligt liten felklassificering av den dominerande aktivitetstypen. Ett exempel är om man vill kunna mäta låga alfaaktiviteter i närvaro av höga betaaktiviteter. Då skulle det vara fördelaktigt att minimera fel-klassificeringen av betapulser på bekostnad av något större felklassificering av alfa pulser. Omvänt gäller minimering av felklassificering av alfa pulser då alfaaktiviteten är betydligt större än betaaktiviteten.

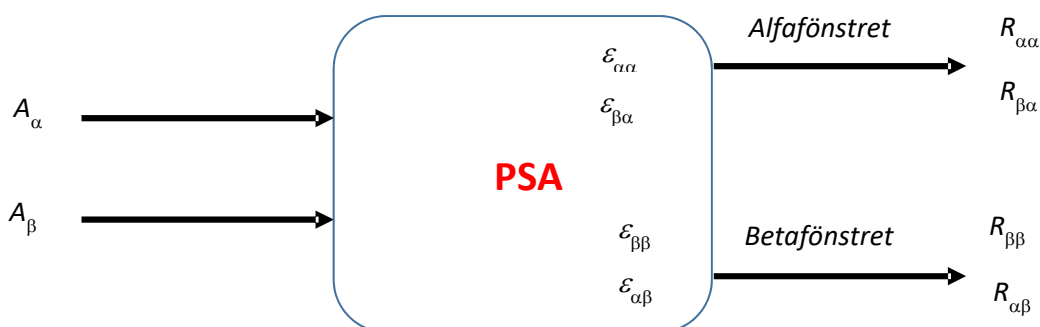
I det här arbetet har ett syfte varit att kunna mäta låga alfaaktiviteter vid närvaro av höga betaaktiviteter, dvs. låga alfa/beta-aktivitetskvoter. Det är då alltså önskvärt att ytterligare minska felklassificeringen av händelser orsakade av betapartiklar. Detta görs till priset av en större felklassificering av alfahändelser, vilket dock inte spelar någon roll om betaaktiviteten är betydligt högre än alfaaktiviteten.

2.2 Modellekvationer

I litteraturen förekommer åtminstone två olika modellekvationer för mätning av totalalfa- respektive totalbetaaktivitet. Den ena modellekvationen, som vi här efter benämner effektivitetsmodellen, bygger på att en partikeltyp har olika mäteffektivitet för att detekteras i de olika spektrumfönstren (alfa- respektive betafönster) [STO 2017]. Dessa mäteffektiviteter är en funktion av PSA-värdet. Exempelvis har en betapartikel en effektivitet $\varepsilon_{\beta\beta}$ för detektion i betafönstret och en effektivitet $\varepsilon_{\beta\alpha}$ att detekteras i alfafönstret. På samma sätt har en alfapartikel en effektivitet $\varepsilon_{\alpha\alpha}$ för detektion i alfafönstret och en effektivitet $\varepsilon_{\alpha\beta}$ för detektion i betafönstret. Den andra modellen, här efter kallad felklassificeringsmodellen [RUS 2006], har använts i det här arbetet och bygger på korrektion av andelen felklassificering. I den senare modellen korrigerar man för andelen felklassificerade alfahändelser, dvs. andelen alfahändelser som hamnar i betafönstret, och tvärtom.

2.2.1 Effektivitetsmodellen (ε -modell)

I figur 2 visas en schematisk bild av effektivitetsmodellen, vilken i härledningen utgår ifrån de olika aktiviteterna.



Figur 2. Schematisk figur för härledning av effektivitetsmodellen.

Från figuren definieras följande instorheter:

- $\varepsilon_{\alpha\alpha}$ effektiviteten för att detektera en alfapartikel i alfafönstret
- $\varepsilon_{\beta\beta}$ effektiviteten för att detektera en betapartikel i betafönstret
- $\varepsilon_{\alpha\beta}$ effektiviteten för att detektera en alfapartikel i betafönstret
- $\varepsilon_{\beta\alpha}$ effektiviteten för att detektera en betapartikel i alfafönstret
- $R_{\alpha\alpha}$ nettoräknehastigheten i alfafönstret från alfapartiklar
- $R_{\beta\alpha}$ nettoräknehastigheten i alfafönstret från betapartiklar
- $R_{\beta\beta}$ nettoräknehastigheten i betafönstret från betapartiklar

$R_{\alpha\beta}$ nettoräknehastigheten i betafönstret från alfa-partiklar
 A_α alfaaktiviteten
 A_β betaaktiviteten.

De observerade räknehastigheterna i alfa- respektive betafönstren blir nu

$$R_\alpha = A_\alpha \cdot \varepsilon_{\alpha\alpha} + A_\beta \cdot \varepsilon_{\beta\alpha} \quad (1)$$

$$R_\beta = A_\beta \cdot \varepsilon_{\beta\beta} + A_\alpha \cdot \varepsilon_{\alpha\beta} \quad (2)$$

dvs. $R_\alpha = R_{\alpha\alpha} + R_{\beta\alpha}$ och $R_\beta = R_{\beta\beta} + R_{\alpha\beta}$. I ekv. (1) är den första termen på höger sida räknehastigheten från en alfastrålare i alfafönstret och den andra termen räknehastigheten i alfafönstret från en betastrålare. Motsvarande gäller för ekv. (2) för betafönstret. Löser vi detta ekvationssystem får vi

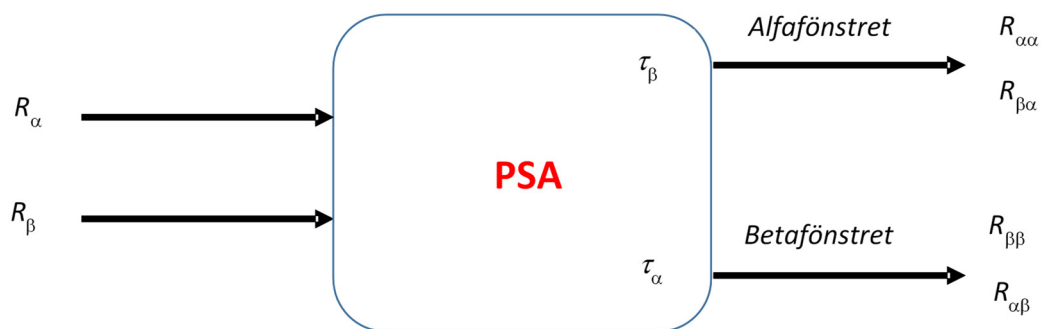
$$A_\alpha = \frac{R_\alpha \cdot \varepsilon_{\beta\beta} - R_\beta \cdot \varepsilon_{\beta\alpha}}{\varepsilon_{\alpha\alpha} \cdot \varepsilon_{\beta\beta} - \varepsilon_{\alpha\beta} \cdot \varepsilon_{\beta\alpha}} \quad (3)$$

$$A_\beta = \frac{R_\beta \cdot \varepsilon_{\alpha\alpha} - R_\alpha \cdot \varepsilon_{\alpha\beta}}{\varepsilon_{\alpha\alpha} \cdot \varepsilon_{\beta\beta} - \varepsilon_{\alpha\beta} \cdot \varepsilon_{\beta\alpha}} \quad (4)$$

De fyra mäteffektiviteterna bestäms genom kalibrering med rena alfa- respektive betastrålande radionuklider.

2.2.2 Felklassificeringsmodellen (τ -modell)

En schematisk figur för felklassificeringsmodellen visas i figur 3. Ansatsen för den här modellen utgår från räknehastigheter.



Figur 3. Schematisk figur för härledning av felklassificeringsmodellen.

Nu definierar vi felklassificeringsfaktorer, d.v.s. utifrån en kalibrering bestäms hur stor andel av alfa-händelser som felklassificeras och hamnar i betafönstret, och tvärt om. Felklassificering av alfa-händelser från en alfastrålare till betafönstret ges då av

$$\tau_\alpha = \frac{R_{\alpha \rightarrow \beta, kal}}{R_{\alpha, kal} + R_{\beta, kal}} \quad (5)$$

och analogt för en betastrålare

$$\tau_{\beta} = \frac{R_{\beta \rightarrow \alpha, kal}}{R_{\alpha, kal} + R_{\beta, kal}} \quad (6)$$

I ekv. (5) är $R_{\alpha \rightarrow \beta, kal}$ räknehastigheten i betafönstret från en alfastrålare och nämnaren summan av räknehastigheterna i alfa- respektive betafönstret för en alfastrålare. Motsvarande gäller för en betastrålare i ekv. (6). Ekv. (5) gäller för en alfastrålare då ingen betastrålare är närvarande i en felklassificeringskalibrering och tvärtom för ekv. (6). Nämnarna i ovanstående ekvationer är alltså inte lika utan i ekv. (5) är nämnaren summan av räknehastigheterna i alfa- och betafönstret för en ren alfastrålare och i ekv. (6) är nämnaren summan av räknehastigheterna i alfa- och betafönstren för en ren betastrålare.

De observerade räknehastigheterna i alfafönstret respektive betafönstret vid en mätning är

$$R_{obs, \alpha} = R_{\alpha} - R_{\alpha} \cdot \tau_{\alpha} + R_{\beta} \cdot \tau_{\beta} \quad (7)$$

$$R_{obs, \beta} = R_{\beta} - R_{\beta} \cdot \tau_{\beta} + R_{\alpha} \cdot \tau_{\alpha} \quad (8)$$

I ekv. (7) är den första termen på högersidan den verkliga räknehastigheten från en alfastrålande radionuklid (en av de eftersökta mätstorheterna), den andra termen är förluster p.g.a. att alfapulser felklassificeras och hamnar i betafönstret ($\alpha \rightarrow \beta$, τ_{α}), samt den tredje termen är tillskott av pulser, p.g.a. felklassificering, till alfafönstret från en betastrålare ($\beta \rightarrow \alpha$, τ_{β}). Motsvarande resonemang gäller för ekv. (8).

Löser vi detta ekvationssystem får vi räknehastigheten R_{α} för alfastrålaren

$$R_{\alpha} = \frac{R_{obs, \alpha} \cdot [1 - \tau_{\beta}] - R_{obs, \beta} \cdot \tau_{\beta}}{1 - \tau_{\alpha} - \tau_{\beta}} \quad (9)$$

och räknehastigheten för betastrålaren

$$R_{\beta} = \frac{R_{obs, \beta} \cdot [1 - \tau_{\alpha}] - R_{obs, \alpha} \cdot \tau_{\alpha}}{1 - \tau_{\alpha} - \tau_{\beta}} \quad (10)$$

Slutligen erhålls de totala alfa- och betaaktiviteterna genom att normera med respektive mäteffektivitet. I det här fallet är det mäteffektiviteten $\varepsilon_{\alpha} = \varepsilon_{\alpha\alpha} + \varepsilon_{\alpha\beta}$ som ska tillämpas för beräkning av den totala alfaaktiviteten och $\varepsilon_{\beta} = \varepsilon_{\beta\beta} + \varepsilon_{\beta\alpha}$ för beräkning av den totala betaaktiviteten, se figur 2 med förklarande text. Detta inses om exempelvis ekv. (7) betraktas och skrivs om enligt

$$R_{\alpha} = R_{obs, \alpha} + R_{\alpha} \cdot \tau_{\alpha} - R_{\beta} \cdot \tau_{\beta}. \quad (11)$$

Om nu ingen betastrålare skulle finnas närvarande (sista termen i högerledet är då alltså noll), kommer den första termen i högerledet att vara räknehastigheten från alfastrålaren i alfafönstret och den andra termen i högerledet räknehastigheten från alfastrålaren i betafönstret. Alltså måste mäteffektiviteten $\varepsilon_{\alpha\beta}$ ingå. Det visar sig också att då kommer felklassificerings- och effektivitetsmodellen att överensstämma. Om enbart

mäteffektiviteten i alfafönstret används skiljer sig modellerna åt med faktorn $\varepsilon_{\alpha\alpha}/(\varepsilon_{\alpha\alpha}+\varepsilon_{\alpha\beta})$.

Slutligen återger vi kopplingen mellan effektivitets- och felklassificeringsmodellerna. Ekv. (5) kan utvecklas enligt följande (samma sak kan göras för ekv. (6))

$$\tau_a = \frac{R_{a \rightarrow b, kal}}{R_{a, kal} + R_{b, kal}} = \frac{A_a \varepsilon_{ab}}{A_a \varepsilon_{aa} + A_a \varepsilon_{ab}} = \frac{\varepsilon_{ab}}{\varepsilon_{aa} + \varepsilon_{ab}} \quad (12)$$

dvs. felklassificeringen av ett partikelslag är en funktion av dess mäteffektiviteter.

2.3 Osäkerhetsmodellering

Osäkerhetsmodellering genomfördes för att, utifrån ett osäkerhetsperspektiv, studera inom vilket intervall av alfa/beta-aktivitetskvoter metoden skulle kunna ge acceptabla resultat.

En metod som kan ge acceptabla resultat för totalalfaaktivitet i närvaro av hög betaaktivitet (låg alfa/beta-aktivitetskvot) behöver primärt ha tillräckligt låg felklassificering av betapartiklar, τ_β , och/eller låg osäkerhet i betafelklassificeringen. Därigenom blir korrekturen i sig liten (lite felklassificering), eller genomförd med tillräckligt god precision (låg osäkerhet).

2.3.1 Beräkning av sammanlagd osäkerhet

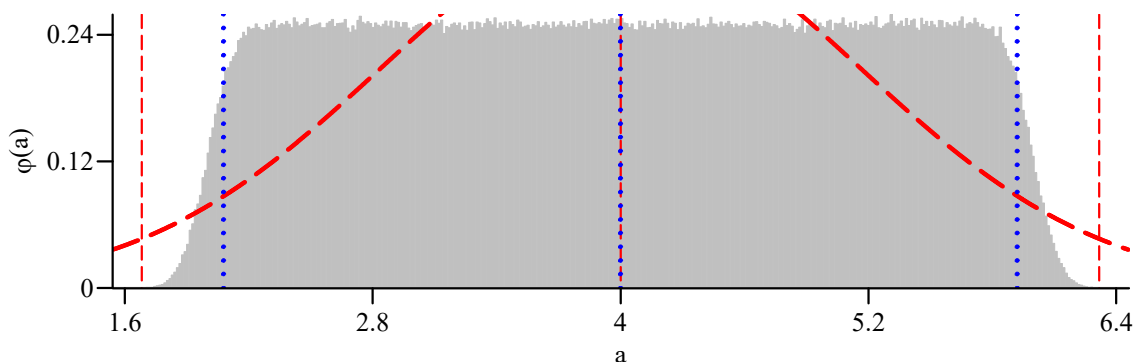
Mätosäkerhetsberäkningar genomfördes med programvaran GUM Workbench (Metrodata GmbH, Braunschweig, Tyskland). Osäkerhetspropagering (*GUM Uncertainty Framework*, GUMUF [GUM 2009]) är strikt giltigt under vissa förutsättningar. Dels måste modellekvationen vara linjär, dels måste alla instorheter vara normalfördelade. Under dessa förutsättningar kommer mätstorheten att bli normalfördelad. I många situationer kan bra, eller åtminstone tillfredställande, skattningar av mätosäkerheten erhållas med osäkerhetspropagering, även om ovanstående villkor inte är helt uppfyllda. Mer problematiskt blir det om ett mätresultat ligger nära en åtgärdsnivå, eftersom sannolikhetsfördelningen för mätstorheten beräknad med osäkerhetspropagering inte blir korrekt utifrån modellering av instorheter då ovanstående villkor inte är uppfyllda. I ett sådant fall är Monte Carlo-beräkning, propagering av fördelningar [JCGM 2008], bättre eftersom det utifrån instorheternas antagna fördelningar ger en korrekt beräknad sannolikhetsfördelning för mätstorheten.⁵

Metoden för osäkerhetsberäkning kan vara viktig om vi exempelvis betraktar ekv. (9) efter normering med mäteffektivitet för att erhålla aktiviteten av alfastrålar. I täljaren har vi bl.a. en subtraktion för bidraget av betahändelser som hamnar i alfafönstret. Om denna term börjar närma sig den första termen i storlek och dominerar det totala variansbidraget kommer den andra termens sannolikhetsfördelning att inverka stort på mätstorhetens sannolikhetsfördelning. För tillräckligt höga räkneshastigheter kommer $R_{\text{obs}, \beta}$ i princip vara normalfördelad. Hur fördelningen för τ_β (i avvikelser från normalfördelning) bör ansättas beror då på kunskapen av denna instorhet och hur den modelleras. Om vi antar att τ_β beror på $E_{\beta \text{max}}$ (låg $E_{\beta \text{max}}$ ger liten felklassificering och hög $E_{\beta \text{max}}$ ger stor felklassificering) kan en modellering av τ_β som ett medelvärde och standardosäkerhet baserat på uppmätta τ_β från olika betastrålande radionuklider resultera i avvikande resultat, framförallt beroende

⁵ Mätstorhet är benämningen på det som ska mätas, exempelvis totalalfaaktivitet, medan instorheter är de storheter som mätstorheten beror av: $Y=f(X_1, X_2, \dots)$. Vid en mätning skattas denna funktion $y=f(x_1, x_2, \dots)$ där x_i är skattningar av instorheterna. Ofta skattas dessa genom mätningar.

på energin för den dominerande betaaktiviteten. Ett exempel är då bestämning av τ_β genomförs med $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ (hög $E_{\beta\text{max}}$) medan ett prov innehåller ^{63}Ni (låg $E_{\beta\text{max}}$).⁶

I figur 4 visas ett hypotetiskt exempel $a = b - c$ (jämför täljaren i ekv. (9)). I exemplet var $b = (10 \pm 0,1)$ och $c = (6 \pm 2)$, där b modellerades med en normalfördelning med standardosäkerheten 0,1 och c med en rektangulär fördelning med medelvärde 6 och halvvärdesbredden 2.



Figur 4. Osäkerhetsberäkning med i) osäkerhetspropagering: röd streckad kurva, och ii) Monte Carlo-beräkning: grå fördelning utifrån exemplet i texten. Röda lodräta linjer är 2,5 respektive 97,5 % percentiler utifrån osäkerhetspropagering och blå lodräta linjer samma utifrån Monte Carlo-beräkningen.

I figur 4 framgår att det i exemplet har betydelse hur man beräknar den sammanlagda osäkerheten. Om nu exempelvis en aktionsnivå ligger vid 97,5 %-percentilen för osäkerhetspropageringen (lodrat streckad röd linje strax under värdet 6,4 i figur 4) och för en beslutsregel gäller att man accepterar en risk på $\leq 2,5$ % skulle beslutet bli att ingen åtgärd krävs för mätresultat med detta värde. Observera dock att utifrån Monte Carlo-beräkningen blir risken nära noll (arean av den grå fördelningen som ligger över aktionsnivån är försumbar). Om istället aktionsnivån ligger strax över den högra lodräta röda linjen skulle beslutet bli aktion. Om Monte Carlo-beräkning tillämpats skulle beslutet bli ingen aktion och därmed ingen åtgärd (mindre kostnader).

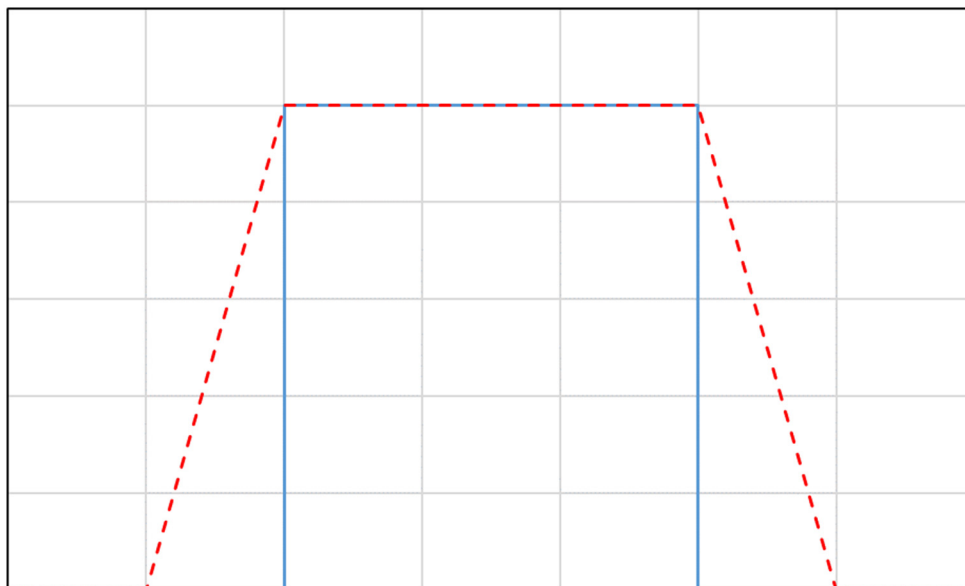
Monte Carlo-beräkning av mätosäkerheter [JCGM 2008] genomfördes för att jämföra med osäkerhetspropagering då man kan misstänka att icke-linjäriteter kan orsaka att förutsättningarna för osäkerhetspropagering inte är helt uppfyllda. Dataprovtagning från instorheterna i modellekvationerna för totalalfa- och totalbetaaktivitet gjordes slumpmässigt från deras respektive sannolikhetsfördelningar (se avsnitt 4.2 senare i rapporten, samt att observerade signaler antogs vara normalfördelade). Storleken på ett Monte Carlo-prov var alltid 50000. Resultaten för de två aktiviteterna sorterades i intervall för att generera deras sannolikhetsfördelningar.

2.3.2 Modellering av τ_α och τ_β

En intressant frågeställning är hur man ska modellera en instorhet när exempelvis kunskapen om den är begränsad. Ofta modelleras instorheter som normalfördelade. Rusconi *et al* [RUS 2006] modellerade dock felklassificeringsfaktorer som rektangulärt fördelade baserat på kalibrering med två radionuklider för respektive faktor. Betafelklassificering togs fram för ^{40}K och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ och alfa felklassificering för ^{241}Am och naturligt uran separerat från dotterprodukter. Att ansätta ett rektangulärt intervall kan vara relevant då osäkerheten i exempelvis de två betaspilloverfaktorerna är små ($\tau_{\beta 40\text{K}}$ och $\tau_{\beta 90\text{Sr}/90\text{Y}}$), men om dessa osäkerheter är stora kan en trapezoidal fördelning vara en bättre

⁶ Ett problem med totalalfa- och totalbetamätningar är att radionuklidsammansättningen är okänd både före och efter mätning.

ansats (se figur 5) eftersom man då tar höjd för osäkerheterna. Ett alternativ skulle kunna vara att ansätta ett rektangulärt intervall med min- respektive maxvärde som tar hänsyn till osäkerheten. Dock skulle en sådan ansats kunna bli konservativ om osäkerheterna i maximalt och minimalt observerade τ_β är stora. För både τ_α och τ_β ansattes därför trapezoidala fördelningar i det här arbetet.



Figur 5. Skillnaden mellan rektangulär respektive trapezoidal fördelning för modellering av felklassificeringsfaktor.

Hur den slutgiltiga fördelningen för exv. den totala alfaaktiviteten blir beror givetvis på ett flertal faktorer. Dels hur de olika instorheterna modelleras, det vill säga deras antagna sannolikhetsfördelningar, men även på alfa/beta-aktivitetskvoten. Ett fokus i det här arbetet har varit att kunna mäta låga alfaaktiviteter i närvaro av höga betaaktiviteter. Då blir det uppenbart att den sista termen i täljaren i ekv. (9) kan få en stor inverkan på sannolikhetsfördelning på mätstorheten alfaaktivitet.

2.3.3 Modellering av ε_β

Mäteffektiviteten i LSC skiljer sig mycket mellan låg- och högenergetiska betastrålare, och generellt ses en ökning av mäteffektiviteten med betastrålarens $E_{\beta\max}$. Om mäteffektiviteten för betastrålare har bestämts med en högenergetisk betastrålare (exempelvis $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$), men ett prov innehåller enbart, eller en stor andel, av en lågenergetisk betastrålare kommer noggrannheten i totalbetaaktiviteten att bli dålig. Ett angreppssätt för att öka noggrannheten skulle i ett sådant fall vara att ansätta ett intervall för betaeffektiviteten mellan effektiviteten för en lågenergetisk betastrålare (minimal effektivitet) till effektiviteten för en högenergetisk betastrålare (maximal effektivitet som ofta är ett (1)). Problemet blir då vilka betastrålande radionuklider man vill inkludera i en totalbetamätning. Som tidigare nämnts inkluderas inte ^3H i en bestämning av totalbetaaktivitet.¹ Däremot finns det andra lågenergetiska betastrålande radionuklider som ska ingå. En radionuklid med liknande $E_{\beta\max}$ som ^3H är ^{241}Pu , som därför har ungefär samma låga mäteffektivitet. I det här arbetet har dock en nedre mäteffektivitet motsvarande $E_{\beta\max}=67\text{ keV}$ tillämpats (^{63}Ni) och en övre mäteffektivitet, som vid en tillräckligt hög $E_{\beta\max}$ i princip blir 1. I ett oquenchat (ej släckt) prov kommer mäteffektiviteten att bli nära 1 då $E_{\beta\max}$ är större än ca. 500 keV (analys av data från [GAC 2017]). Mäteffektiviteten modellerades sedan som en rektangulär fördelning mellan en

minimal (^{63}Ni) och maximal effektivitet ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$). Detta kommer resultera i högre mätosäkerhet för totalbetaaktiviteten, men öka dess noggrannhet.

3 Material och metod

3.1 Allmänt

Mätosäkerhetsberäkningar för alla mätresultat genomfördes enligt [GUM 2008] (osäkerhetspropagering) med mjukvaran GUM Workbench (Metrodata GmbH, Braunschweig, Tyskland). De beräknade mätosäkerheterna redovisas med en täckningsfaktor, $k=2$, vilket motsvaras av ett ungefärligt 95 % konfidensintervall, om inget annat angetts.

3.2 Reagens

Milli-Q vatten (Milli-Q IQ 7000, Merck Millipore) och HNO_3 (65 % EMSURE, Merck Millipore, Darmstadt, Tyskland) användes genomgående. Radionukliderna som användes var ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ (Amersham, Amersham, Buckinghamshire, England), och ^{63}Ni , ^{209}Po och ^{204}Tl (Eckert & Ziegler, Valencia, Kalifornien, USA). Samtliga radionuklidlösningar utom den för ^{204}Tl var certifierade med avseende på aktivitetskoncentration.

3.3 Mätinstrument och inställningar

Mätningar genomfördes med en LSC (Quantulus 1220) med scintillationsvätskorna Ultima Gold AB (UGAB) och Ultima Gold F (UGF) i en antistatbehandlad scintburk av plast, *low diffusion anti-static polyethylene* (Low Diff PE), alltsammans från Perkin Elmer, USA.

Tillämpade instrumentinställningar för Quantulus 1220 är sammanställda i tabell 1 och motiveras nedan.

Tabell 1. Instrumentinställningar

Inställningar Quantulus 1220	
Configuration	Alpha/beta
PAC	Ej PAC (PAC=1)
Coincidence bias	Low
PSA	95 (fastställdes experimentellt i detta arbete)
Alfafönster	Kanal 450-1024
Betafönster	Kanal 100-1024
Tid i instrumentet innan mätning	Direktmätning

3.3.1 Puls amplitude comparator (PAC)

Beroende på från vilken process en signal har sitt ursprung kan amplituderna från instrumentets två fotomultiplikatorer (PM-rör) variera. Om signalen har sitt ursprung från sönderfallet av en radionuklid som man vill mäta kommer kvoten mellan amplituderna från instrumentets två PM-rör att variera runt värdet 1, eftersom ungefär lika mycket ljus kommer träffa de två PM-rören. Om signalen däremot kommer från exempelvis bakgrunden (gammastrålning, myoner) kommer amplituderna att skilja sig åt signifikant, eftersom den primära interaktionen kommer ske i ett av PM-rören med en eventuell samtidig signal i det andra men med en lägre amplitud p.g.a. energiförlust i den första interaktionen. Genom att justera

pulsamplitudskomparatorn (PAC), sätts ett kriterium på hur lika amplituderna måste vara för att instrumentet ska acceptera signalen som en sann sönderfallshändelse kan man reducera bakgrunden, vilket teoretiskt skulle kunna ge en lägre detektionsgräns. Eftersom en justering av PAC även inverkar på mäteffektiviteten (instrumentet förkastar en viss andel sanna händelser beroende på hur hårt kriterium som satts) kommer det att finnas en optimal PAC-inställning som ger lägst detektionsgräns. Man bör undvika att tillämpa PAC då man mäter Cherenkovsstrålning eller lågenergetisk betastrålning eftersom det då produceras få fotoner, vilket i sig ger stor variabilitet i pulshöjder [XIA 2020]. På Quantulus 1220 kan PAC ställas mellan 1-256, där PAC=1 innebär ingen pulshöjdsdiskriminering [WAL 2002]. Vid totalalfa/totalbeta-mätning kan inte PAC tillämpas och inställningen låses därför automatiskt till 1.

3.3.2 Coincidence bias

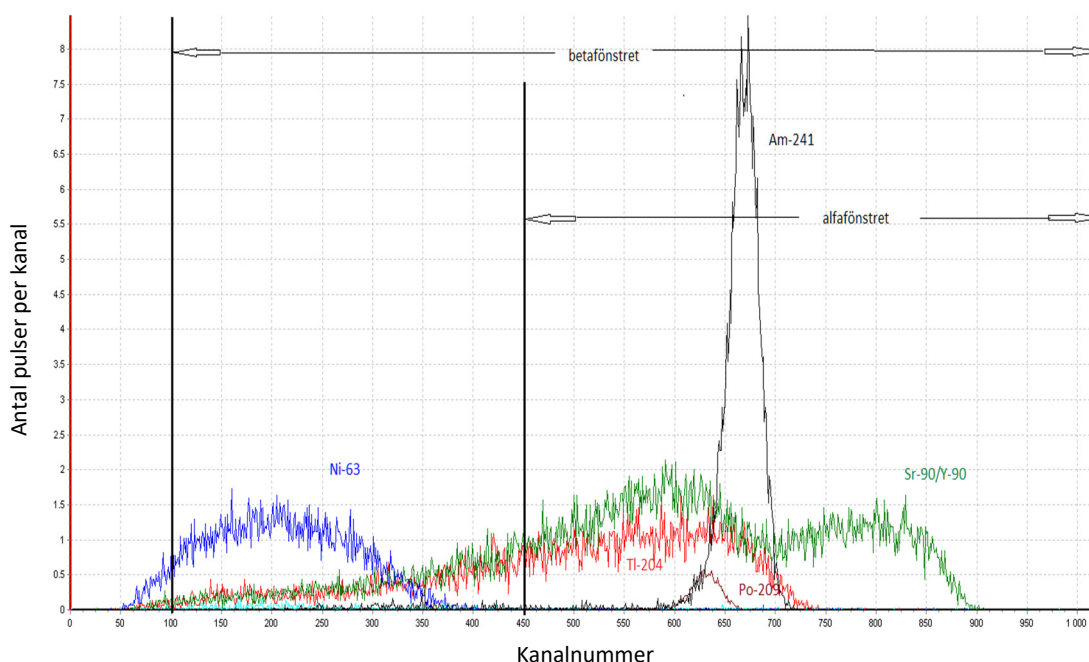
Coincidence bias kan sättas till *low* eller *high*. Vid inställningen *high bias* diskrimineras pulser i kanalerna 1 - 300 och därför ska *high bias* inte användas vid mätning av lågenergetisk beta (t ex ^3H , med $E_{\beta\text{max}} = 18,6 \text{ keV}$). Inställningen *high bias* rekommenderas vid användning av scintburkar i glas för att diskriminera bort Cherenkovstrålning och fluorescens från ^{40}K i glaset. Vidare hindrar inställningen *high bias* att pulser från lågenergetisk beta summeras med pulser från högenergetisk beta. Eftersom vi i denna metod använder plastscintburkar och dessutom vill täcka in ett så stort energiområde som möjligt, för att kunna mäta majoriteten av förekommande betaenergies, valdes inställningen *low bias*.

3.3.3 Alfa- och betafönster

Både alfa- och beta-MCA har 1024 kanaler och med ett öppet mätfönster räknas pulserna från kanal 1-1024. Ljuspulser från statisk elektricitet och kemiluminiscens registreras i de lägre kanalerna och kan diskrimineras bort via inställning av mätfönstret.

Mätfönstret i alfa-MCA sattes till 450-1024 för att täcka in alfatopparna och samtidigt diskriminera bort felklassificerade betapulser och bakgrundspulser i kanalerna 0-450.

Mätfönstret i beta-MCA sattes till 100-1024 för att täcka in så stor andel som möjligt av betapulserna utan att riskera interferens från kemiluminiscens och statisk elektricitet. En energikalibrering med nukliderna ^{63}Ni , ^{204}Tl och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ visade att kanal 100 motsvarar ca 10 keV (extrapolerat) vilket gör att riktigt lågenergetiska betastrålare som ^3H ($E_{\beta\text{max}} = 18,6 \text{ keV}$) och ^{241}Pu ($E_{\beta\text{max}} = 20,8 \text{ keV}$) till stor del hamnar utanför mätfönstret. Figur 6 visar mätfönstren samt spektrum för samtliga radionuklider som använts i arbetet.



Figur 6. Alfafönstret (kanal 450-1024) och betafönstret (kanal 100-1024), tillsammans med alfaspektra från ^{241}Am och ^{209}Po och betaspektra från ^{63}Ni , ^{204}Ti och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.

3.4 Parametrar låsta i försöken

För att begränsa arbetets omfattning låstes, baserat på litteraturstudier och tidigare erfarenheter, följande parametrar: scintillationsburk, scintillationsvätska (typ och volym), provvolym och provmatris (tabell 2). Motiveringen till valen presenteras nedan.

Tabell 2. Metodens låsta parametrar.

Parameter	
Scintillationsburk	Low Diff PE Vial, 20 mL, Antistat
Scintillationsvätska	11 ml Ultima Gold AB + 4 ml Ultima Gold F
Provvolym och matris	3 ml prov (dricksvatten, i metodutvecklingen MQ) syrasatt till 0,02 M HNO_3

3.4.1 Scintillationsburk

Scintillationsburkar i glas innehåller ^{40}K och ger därför en högre bakgrund, och därmed en högre detektionsgräns, än scintillationsburkar i olika plastmaterial. Optiska fenomen i glaset kan också, under vissa förhållanden, leda till dubbeltoppar [PAS 1994], vilket tidigare även har observerats vid FOI för instrumentet Quantulus 1220. Nackdelen med scintillationsburkar av plast är dels att scintillationsvätskor som innehåller bensen, toluen eller 1,2,4-trimetylbensen diffunderar genom plasten [XIA 2020], dels att de bygger upp statisk elektricitet. Detta ger upphov till ljusblixtar som registreras som pulser i de lägsta kanalerna i mångkanalsanalysatorerna och kan ge en hög interferens som påverkar resultatet i framförallt lågaktiva prov. Quantulus 1220 har en inbyggd funktion för avjonisering som ska eliminera fenomenet. Trots det har höga pulstal, som kan antas komma från statisk elektricitet, tidigare observerats. För att hålla bakgrundsnivån låg och

för att undvika statisk elektricitet valdes en scintillationsburk i antistatisk plast.

3.4.2 Scintillationsvätska och volymer

Det finns ett flertal scintillationsvätskor på marknaden som är anpassade för totalalfa/totalbeta-mätningar. En sådan scintillationsvätska förstärker skillnaden i ljuspulserna, som genereras av alfa- respektive betapartiklarna, vilket leder till en minskad felklassificering. Utifrån tillverkarens (Perkin Elmer) uppgifter valdes en blandning av två olika scintillationsvätskor: UGAB och UGF. Volymer på scintillationsvätskor och prov valdes utifrån tillverkarens rekommendationer med avsikten att minimera felklassificering⁷ [PE 2021]. För att minska läckagerisken anpassades totalvolymen (18 ml) så att vätskenivån var nedanför halsen i provburken, vilket också medförde att provet blev lättare att blanda. Det maximala provupptaget (0,225 ml/ml scintillationsvätska) är väsentligt lägre för blandningen UGAB + UGF jämfört med enbart UGAB (1 ml/ml). Dock kan detektionsgränsen minskas väsentligt genom indunstning av provet, under förutsättningen att nitratkoncentrationen samtidigt kan kontrolleras. Eftersom FOI tidigare använt enbart UGAB som scintillationsvätska för totalalfa/totalbeta-mätningar, genomfördes jämförande felklassificeringsmätningar med enbart UGAB och den valda blandningen av UGAB och UGF.

3.4.3 Nitratkoncentrationen och pH i provmatrisen

Vid provtagning av dricksvatten tillsätts syra, vanligtvis salpetersyra (HNO_3), för att undvika adsorption av radionuklider och andra provkomponenter på väggarna i provburken. I ISO-standarden [ISO 2018] rekommenderas ett $\text{pH} \geq 1,7$ efter indunstning. Det har tidigare visats att felklassificering och mäteffektivitet påverkas av HNO_3 -koncentrationen, men däremot inte av olika koncentrationer saltsyra (HCl) [ZAP 2012]. Därmed drar vi slutsatsen att det är nitratkoncentrationen och inte pH som inverkar på metodens prestanda. Baserat på ovanstående fastställdes provmatrisen till 0,02 M HNO_3 (motsvarar $\text{pH} 1,7$). För att undersöka metodens känslighet med avseende på HNO_3 -koncentrationen varierades denna mellan 0,002 och 0,2 M i valideringen (se 3.9).

3.5 Quench

Quench är en parameter som måste korrigeras för om ett prov avviker signifikant i quenchvärde relativt kalibreringen. Vid totalalfa- och totalbetamätningar kan det dessutom bli extra problematiskt eftersom inte bara mäteffektiviteter utan även felklassificering (som de facto är en funktion av mäteffektiviteter, se teoriavsnittet) är en funktion av quench [DeV 2007]. För att minska eventuella problem vid mätning av totalalfa- och totalbetaaktiviteter kan det därför vara önskvärt att minska skillnaden i quench mellan kalibrering och prov [ZAP 2012]. I det här arbetet har därför utgångspunkten varit att quenchnivån i prov och kalibrering ska vara tillräckligt lika. Dock har inverkan av quench studerats i valideringen (se 3.9).

⁷Enligt Perkin Elmer minskar felklassificeringen, i matrisen H_2O , från 0,74-1,87 % (enbart UGAB) till 0,58-0,68 % (75 % UGAB + 25 % UGF) och i matrisen 1 M HNO_3 från 0,87 – 1,73 % till 0,64 – 0,75 %.

3.6 Alfa- och betafelklassificering och bestämning av PSA-värde

Normalt bestäms ett så kallad optimal PSA-värde i skärningspunkten mellan alfa- och betastrålaren i en felklassificeringsgraf. PSA-värdet väljs då där både alfa- och betafelklassificeringarna samtidigt är så låga som möjligt. Eftersom målet med denna studie framförallt var att minimera betafelklassificeringen anpassades diskrimineringen ytterligare mellan alfa och beta för att hitta en lämpligare nivå. Detta gjorde att valt PSA-värde inte motsvarar skärningen mellan alfa- och betafelklassificeringskurvorna. Som tidigare nämnts gäller att ovan nämnda skärningspunkt enbart är ett optimum med avseende på båda typer av felklassificering. För fall då man behöver kunna mäta alfa/beta-aktivitetskvoter som avviker mycket från 1, kan denna skärningspunkt istället vara ett sub-optimum som resulterar i stora osäkerheter för den ena typen av aktivitet.

Alfa- och betafelklassificering (τ_α och τ_β) mättes som funktion av PSA-inställning. Betaenergins inverkan studerades genom att använda tre olika betastrålare: $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ($E_{\beta\text{max}} = 2,3 \text{ MeV}$), ^{63}Ni ($E_{\beta\text{max}} = 0,067 \text{ MeV}$) och ^{204}Tl ($E_{\beta\text{max}} = 0,76 \text{ MeV}$). Felklassificering av alfa-pulser studerades genom att använda två olika alfastrålare: ^{241}Am ($E_\alpha = 5,49 \text{ MeV}$ ($I_\alpha = 0,84$)) och $E_\alpha = 5,44 \text{ MeV}$ ($I_\alpha = 0,13$)) samt ^{209}Po ($E_\alpha = 4,88 \text{ MeV}$ ($I_\alpha = 0,99$)).

Provmatrisen bestod av Milli-Q och 0,02 M HNO_3 med ca 5 Bq tillsatt alfa- eller betastrålare till en total provvolym på 3 ml.

Provet tillfördes en scintburk och 11 ml UGAB och 4 ml UGF tillsattes. Därefter blandades provet väl och mättes med LSC. Varje radionuklid mättes vid minst tre olika tillfällen vid PSA 20-140, detta för att bestämma τ_α och τ_β samt variabilitet utöver det räknestatistiska bidraget (reproducerbarhet).

Blankprover (3 ml Milli-Q, 11 ml UGAB och 4 ml UGF) mättes vid varje PSA-värde. Mätningar med enbart UGAB som scintillationsvätska genomfördes för att undersöka scintillationsvätskans inverkan på felklassificering.

Initiala mätningar visade att ett PSA-värde på 95 visade sig lämplig för metoden. Att välja PSA=95 innebär en lägre felklassificering av beta på bekostnad av en högre felklassificering av alfa.

3.7 Effektivitetskalibrering

Efter fastställd lämpligt PSA-värde genomfördes effektivitetskalibrering med ^{241}Am , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ och ^{63}Ni . Kalibreringen genomfördes vid tre olika tillfällen för att få en uppskattning om reproducerbarheten. För jämförelse bestämdes mäteffektiviteten vid PSA-värdena 70 ($\tau_\alpha = \tau_\beta$) och 95, vilka enligt teorin förväntas bli lika.

Mäteffektiviteten för respektive nuklid beräknades genom att summera de uppmätta signalerna för alfa-MCA och beta-MCA och dividera med tillsatt aktivitet (se felklassificeringsmodellen i teoridelen). Samma provmatris, tillsatt aktivitet och total provvolym som vid bestämning av lämpligt PSA-värde, användes och blankprover (3 ml Milli-Q, 11 ml UGAB och 4 ml UGF) mättes vid varje kalibrering.

3.8 Aktivitetskvoter

Efter fastställt PSA-värde, uppmätt τ_α för ^{241}Am och τ_β för ^{63}Ni och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ med respektive mäteffektiviteter från effektivitetskalibreringen mättes avvikelser för mätningar vid olika alfa/beta-aktivitetskvoter. Detta genomfördes med de två radionuklidkombinationerna ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ samt ^{241}Am och ^{63}Ni (tabell 3).

Tabell 3. Studerade alfa/beta-aktivitetskvoter för radionuklidkombinationerna ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ samt ^{241}Am och ^{63}Ni .

Radionuklidkombination	Alfa/beta-aktivitetskvot
$^{241}\text{Am} + ^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	0,0003; 0,001; 0,003; 0,01; 0,03; 0,1; 0,3; 1; 10
$^{241}\text{Am} + ^{63}\text{Ni}$	0,0003; 0,001; 0,003; 0,01; 0,03; 0,1; 0,3; 10

Radionuklidkombinationerna ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ samt ^{241}Am och ^{63}Ni mättes vid två olika PSA-värden (70 respektive 95) för att studera vad som är mättekniskt möjligt inom metodens osäkerhetsbegränsningar.

3.9 Validering av metodens prestanda

För att undersöka hur stora systematiska avvikelser som metoden ger användes experimentell försöksdesign [SAR 2020] som dels reducerar antalet försök, dels hanterar möjliga samspelseffekter. Försöket designades med fullfaktordesign där de faktorer som ansågs svåra eller omöjliga att kontrollera i ett prov varierades medan de övriga låstes. Faktorerna som varierades var $E_{\beta\text{max}}$ (67 keV (^{63}Ni) och 546 keV (^{90}Sr)+2279 keV (^{90}Y)), HNO_3 -koncentrationen (0,002 – 0,2 M), alfa/beta-aktivitetskvoten (0,001-1) och quench (SQPE-värde ca 680-800). Det hade varit önskvärt att även variera alfaenergin, men svårigheten att erhålla en certifierad standardlösning med en alfaenergi som både avviker signifikant från ^{241}Am (5,5 MeV) och har en tillräckligt hög aktivitetsnivå för att kunna späda matrisen till en tillräckligt låg nitratkoncentration, ledde till att alfaenergin hölls konstant. Försöksdesignen omfattade 19 prov men kompletterades med resultat från ytterligare 22 prov som använts för att optimera PSA-värde och undersöka effekten av olika alfa/beta-aktivitetskvoter. Samtliga mätresultat utvärderades med modellerade mäteffektiviteter och felklassificeringskorrektioner (se 0 senare i rapporten) vid framtagen PSA-inställning 95. De uppmätta aktiviteterna (Bq/prov) jämfördes sedan med tillsatt aktivitet.

4 Resultat och diskussion

Resultaten är indelade i fyra delar. I första delen (4.1) ges resultaten från bestämning av felklassificeringsfaktorer, effektivitetskalibreringar och en jämförelse mellan två olika scintillationsvätskor. Dessutom ges mätresultat för olika alfa/beta-aktivitetskvoter under förutsättningen att radionukliderna i ett prov är kända. Det innebär att utvärdering genomfördes med kalibreringsparametrar för respektive känd radionuklid (idealfallet). I den andra delen (0) redovisas en modell för hur kalibreringsparametrarna bör beräknas så att hänsyn tas till hela spektrumet av radionuklider som kan ingå i en totalalfa- och totalbetamätning. I den tredje delen (4.3) visas metodens systematiska avvikelse för parametrar som kan vara svåra att hålla konstanta relativt kalibreringen. Sist redovisas mätosäkerheten som funktion av alfa/beta-aktivitetskvoten (4.4). Där har det faktum att ett prov kan innehålla olika radionuklider beaktats. Dessutom beskrivs hur vi anser att man bör modellera felklassificeringsfaktorer och mäteffektiviteter, samt vad konsekvensen då blir för aktivitetsfördelningarna för totalalfa- och totalbetaaktiviteterna.

4.1 Felklassificeringsfaktorer och mäteffektiviteter samt aktivitetsmätning vid olika aktivitetskvoter

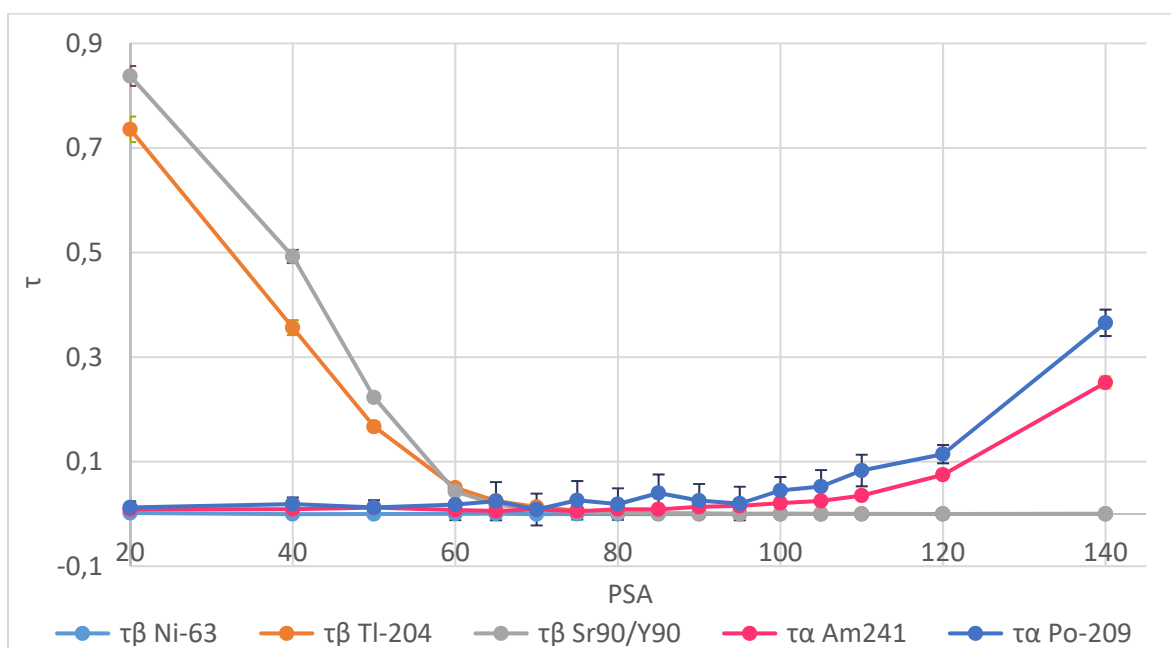
4.1.1 Felklassificeringskurvor och felklassificeringsfaktorer

Felklassificering av alfa- respektive betastrålare som funktion av PSA-värde visas i figur 7 och 8 (diagrammet i figur 8 är en förstoring av diagrammet i figur 7). Felklassificeringen av betastrålare minskade med ökande PSA-värde och var nära noll för alla betastrålare vid $PSA \geq 90$ (ses bäst i figur 8). Generellt var felklassificeringen lägre för betastrålare med lägre energi, vilket kan observeras för ^{63}Ni ($E_{\beta\text{max}} = 0,067 \text{ MeV}$). Felklassificeringen var lägre för ^{204}Tl ($E_{\beta\text{max}} = 0,76 \text{ MeV}$) än för $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ($E_{\beta\text{max}} = 2,3 \text{ MeV}$) vid $PSA \leq 60$. Från $PSA 65$ till $PSA 90$ (se figur 8) var dock förhållandet omvänt och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ hade lägre felklassificering än ^{204}Tl .

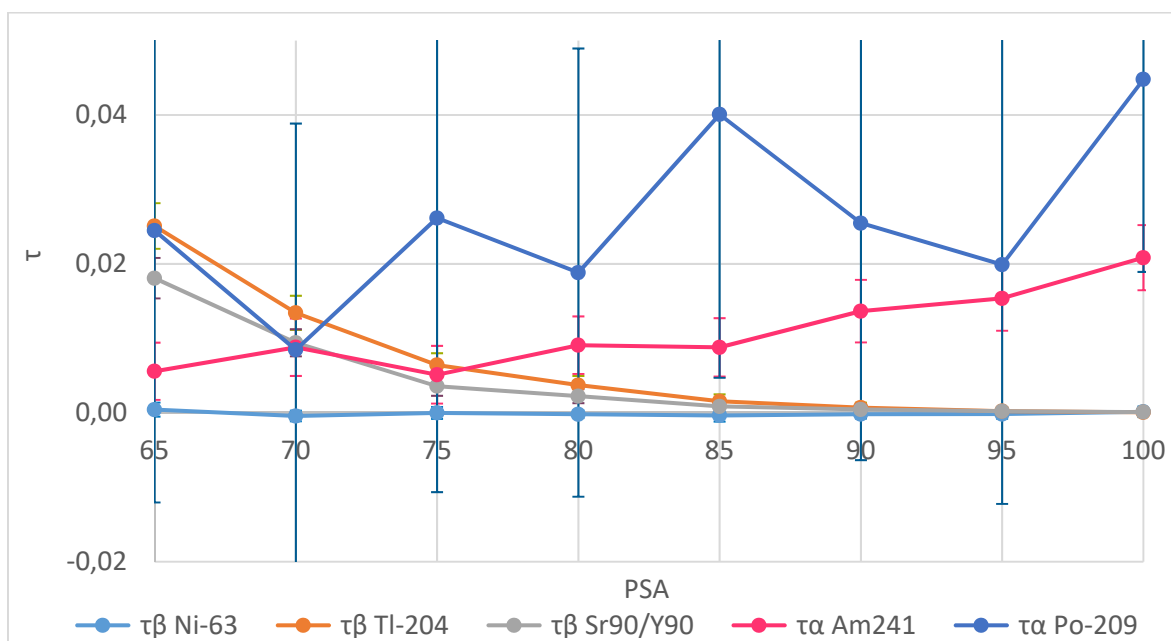
Felklassificeringen av alfastrålare höll sig relativt konstant för ^{241}Am ($E_{\alpha}=5,49 \text{ MeV}$) och ^{209}Po ($E_{\alpha}=4,88 \text{ MeV}$) upp till $PSA 75-80$. Felklassificeringen ökade sedan med ökande PSA-värde och var högre för ^{209}Po än för ^{241}Am . De Vol [DeV 2007] föreslår att skillnaden i felklassificering mellan alfastrålare med olika energier snarare beror på sönderfallsschemat än på alfapartikelns energi. Alfäsönderfallet från ^{241}Am följs (i koincidens) av en gammaemission som skulle kunna leda till en förlängd ljuspuls, jämfört med ljuspulsen från andra alfastrålare, och därmed skulle risken för felklassificering minska. De större osäkerhetsstaplarna för ^{209}Po (figur 8 och senare i tabell 4) beror på att det inte var möjligt att använda lika hög aktivitetskoncentration som i övriga kalibreringsprover. Detta berodde på att ^{209}Po -stamlösningen hade låg aktivitetskoncentration i kombination med hög HNO_3 -koncentration, och därför gick det inte att tillreda en lösning med tillräckligt hög aktivitetskoncentration med samma provmatris som övriga kalibreringsprover.

Utifrån figur 8 erhöles skärningspunkten mellan felklassificeringskurvorna för ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ vid $PSA 70$. Felklassificeringen för beta ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) minskade dock ytterligare mellan $PSA 70-95$ och eftersom syftet med studien vara att utveckla en metod som minskar felklassificeringen av

betastrålare valdes PSA-värdena 70 och 95 för vidare jämförelser i det efterföljande arbetet.



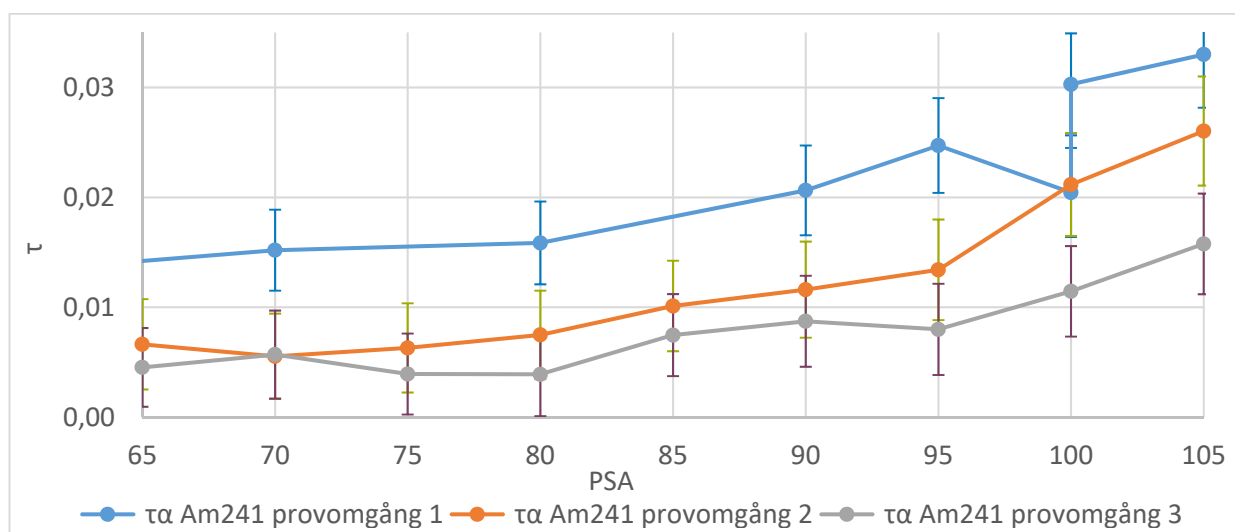
Figur 7. Medelvärden av tre mätningar vid PSA 20-140 för ^{63}Ni , ^{204}Tl , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{241}Am och ^{209}Po . Osäkerhetsstaplar för $k=2$. Osäkerhetsstaplar som inte syns är dolda av datapunkten.



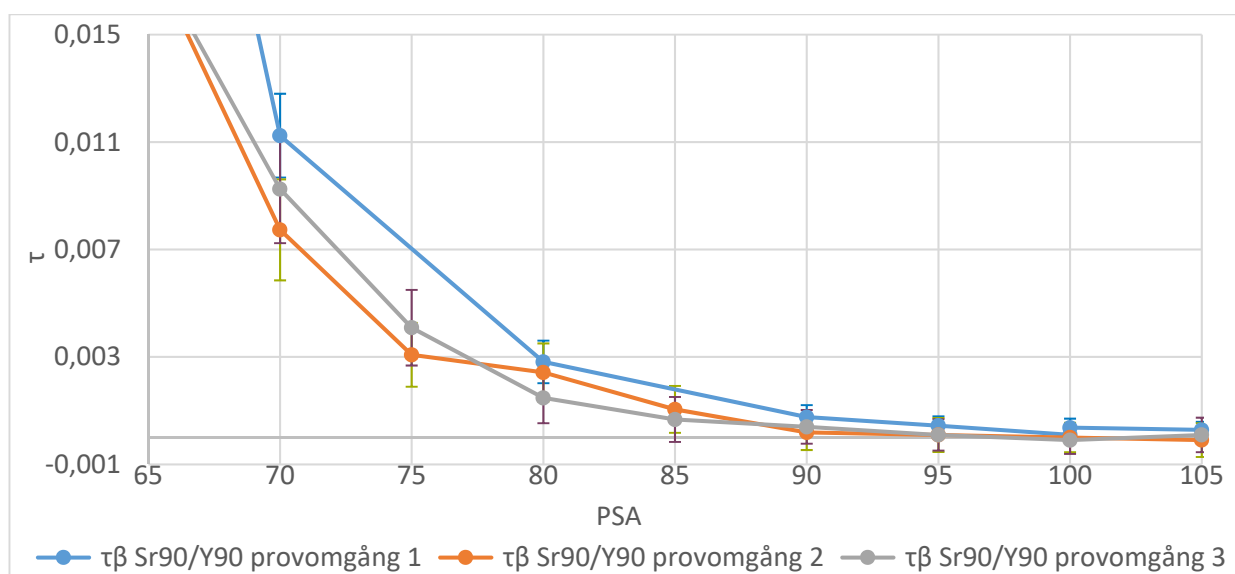
Figur 8. Medelvärden av tre mätningar vid PSA 65-100 för ^{63}Ni , ^{204}Tl , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{241}Am och ^{209}Po . Osäkerhetsstaplar för $k=2$. Figuren är en förstörd del av figur 7.

Felklassificeringskurvor vid PSA 65-105 för ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ visas i figur 9 och 10. För att få ett mått på reproducerbarheten genomfördes mätningarna vid tre olika tillfällen (medelvärden av tre mätningar visas i figur 7-8, vidare i tabell 4-5 och figur 11-12). Resultaten (figur 9 och 10) visar att det inte enbart är räknestatistiken som bidrar till

osäkerheten i felklassificeringen, utan andra okända processer inverkar också [THO 2011] och därför bör man mäta felklassificering vid ett flertal tillfällen för att erhålla ett mer representativt värde.



Figur 9. ^{241}Am vid tre mätningar vid PSA 65-105. Osäkerhetsstaplar för $k=2$. För provomgång 1 finns ett dubbelprov vid PSA=100.



Figur 10. $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ vid tre mätningar vid PSA 65-105. Osäkerhetsstaplar för $k=2$.

Felklassificeringsresultaten för alla mätta radionuklider vid PSA 70 och 95 visas i tabell 4. ^{241}Am gav en något högre felklassificering, ca 0,015, vid PSA 95 mot ca 0,0088 vid PSA 70 (skillnaden i felklassificering av alfastrålare är här signifikant på 95 %-nivån). Felklassificeringen för $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ minskade avsevärt från ca 0,0094 vid PSA 70 till ca 0,00021 vid PSA 95. De negativa resultaten för ^{63}Ni beror på att blankens räknehastighet var högre än räknehastigheten från ^{63}Ni i alfa-MCA.

Tabell 4. Felklassificering vid PSA 70 och 95. Felklassificeringsresultaten är medelvärden av tre mätningar och presenteras med tillhörande mätosäkerhet, $k=2$.

Nuklid	PSA	τ_{α}	τ_{β}
^{241}Am	70	$0,00719 \pm 0,00161$	
^{241}Am	95	$0,01455 \pm 0,00189$	
^{209}Po	70	$0,0085 \pm 0,0304$	
^{209}Po	95	$0,0199 \pm 0,0321$	
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	70		$0,009321 \pm 0,000996$
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	95		$0,000365 \pm 0,000269$
^{204}Tl	70		$0,01343 \pm 0,00229$
^{204}Tl	95		$0,000225 \pm 0,000545$
^{63}Ni	70		$-0,000427 \pm 0,000715$
^{63}Ni	95		$-0,000168 \pm 0,000626$

4.1.2 Effektivitetskalibrering

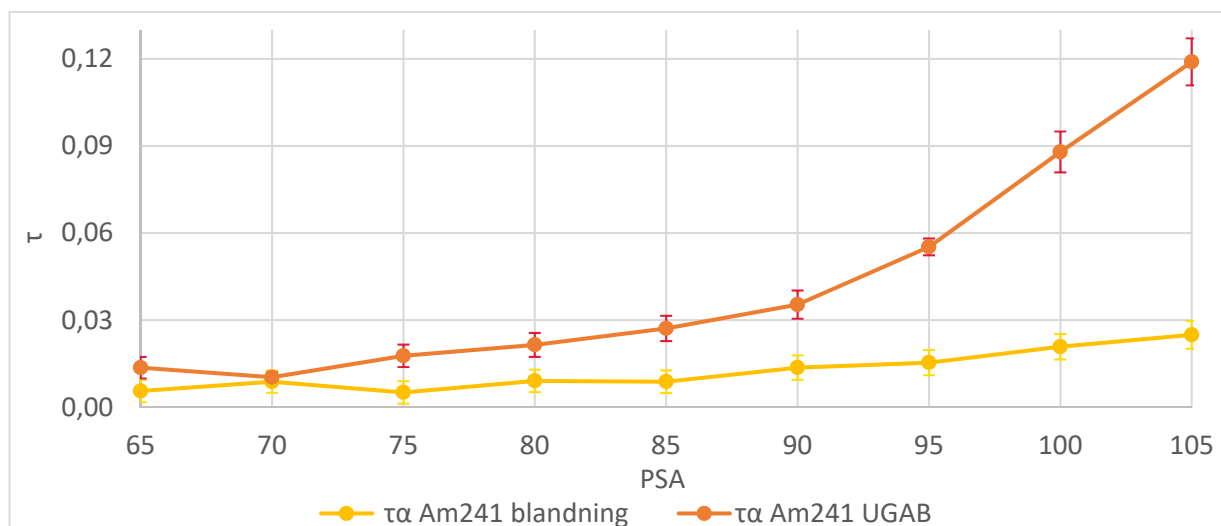
Resultaten från effektivitetskalibreringen med ^{241}Am , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ och ^{63}Ni vid PSA 70 och 95 visas i tabell 5. Notera att mäteffektiviteterna vid de olika PSA-inställningarna är lika eftersom pulserna från båda MCA ska summeras, se teoriavsnittet.

Tabell 5. Effektivitetskalibrering med ^{241}Am , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ och ^{63}Ni vid PSA 70 och 95. Mäteffektivitet är medelvärden av tre mätningar och presenteras med tillhörande mätosäkerhet, $k=2$.

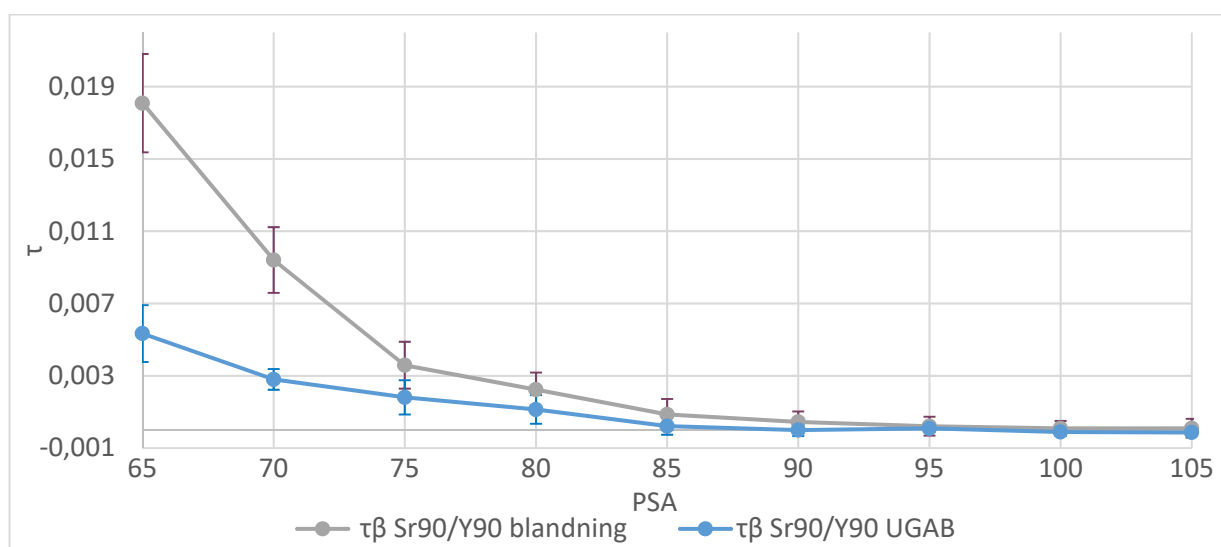
Nuklid	PSA	Mäteffektivitet
^{241}Am	70	$0,9939 \pm 0,0120$
^{241}Am	95	$0,9829 \pm 0,0119$
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	70	$0,9848 \pm 0,0126$
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	95	$0,9921 \pm 0,0127$
^{63}Ni	70	$0,7584 \pm 0,0184$
^{63}Ni	95	$0,7563 \pm 0,0184$

4.1.3 Scintillationsvätskor- UGAB+UGF vs UGAB

Felklassificeringsresultat från jämförelse av scintillationsvätskor (blandning UGAB+UGF och endast UGAB) visas för ^{241}Am i figur 11 och för $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ i figur 12. För ^{241}Am , vid PSA 70, var felklassificeringen lika stor för de båda varianterna för att sedan vara mindre för UGAB+UGF vid högre PSA-värde. För $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ gav UGAB+UGF större felklassificering än UGAB vid PSA 70. Vid högre PSA-värden tangerar resultaten varandra, för att vara lika vid PSA 95. Sammantaget visar resultaten att felklassificeringen minskar och blir bättre eller lika bra för UGAB+UGF jämfört med UGAB vid PSA 95, vilket ger bra förutsättningar för framtida mätningar vid valt PSA-värde.



Figur 11. Jämförelse mellan blandning av scintillationsvätskor (UGAB + UGF) och endast UGAB vid PSA 65-105 för ^{241}Am . Medelvärde av tre mätningar, osäkerhetsstaplar för $k=2$.



Figur 12. Jämförelse mellan blandning av scintillationsvätskor (UGAB + UGF) och endast UGAB vid PSA 65-105 för $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. Medelvärde av tre mätningar, osäkerhetsstaplar för $k=2$.

4.1.4 Mätning vid olika alfa/beta-aktivitetskvoter

De aktivitetskvoter som undersöktes (tabell 3) baseras på att de flesta prover efter en kärnkraftsolycka eller kärnladdningsexplosion kommer att innehålla betydligt mer beta- än alfaaktivitet. I [WHO 2017] finns ett gränsvärde för Individual Dose Criterion (IDC)⁸ på 0,1 mSv/år. En indikation på att IDC riskerar att överskridas är när totalalfaaktiviteten (inklusive radon) överstiger 0,5 Bq/l eller när totalbetaaktiviteten överstiger 1 Bq/l.

I [ISO 2018] nämns förutom nivåerna från [WHO 2017] beredskapsnivåer på 20 Bq/l för totalalfa och 125 Bq/l för totalbeta. En screeningmetod för

⁸ IDC benämns TID (Total Indicative Dose) i en del dokument.

bestämning av totalalfa- och totalbetaaktiviteter bör därför anpassas så att åtminstone de nivåerna kan mätas med tillräckligt bra noggrannhet.

Resultaten från alfa/beta-aktivitetskvotsmätningar, dvs. hur bra kan alfaaktiviteten mätas i närvaro av betydligt högre betaaktivitet, vid PSA 70 och 95 för ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ samt ^{241}Am och ^{63}Ni , visas i tabell 6-9. De mäteffektiviteter samt τ_α och τ_β som användes för ^{241}Am , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ och ^{63}Ni i beräkningarna återfinns i tabell 4 och 5. Osäkerheten i kvoten uppmätt/tillsatt aktivitet i tabellerna är något överskattad på grund av korrelationer mellan uppmätt och tillsatt aktivitet, eftersom samma standardlösning användes vid tillredning av både kalibreringsprover och de aktivitetskvotprover som beskrivs i tabell 3.

Uppmätt/tillsatt aktivitet för betastrålarna ^{63}Ni och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ visar att i princip samtliga aktivitetskvoter (0,0003-10) ger acceptabla totalbetaresultat inom osäkerheterna vid båda PSA-värdena. De högsta mätta kvoterna för uppmätt/tillsatt aktivitet (kvot 10 och 11 i tabell 6-9) är signifikant över 1, men fortfarande med en maximal relativ avvikelse på 15 %, vilket givet metodens komplexitet får anses tillfredställande. Med tanke på de låga felklassificeringsfaktorerna för betastrålare för båda radionukliderna, vid både PSA 70 och 95, och den relativt stora betaaktivitet relativt alfaaktivitet som tillsattes proven är resultaten väntade.

Uppmätt/tillsatt aktivitet för ^{241}Am visar att aktivitetskvoter $\geq 0,01$ vid PSA 70 respektive $\geq 0,001$ vid PSA 95 ger acceptabla totalalfaresultat. De högsta mätta kvoterna (kvot 10 och 11 i tabell 6-9) visar även på en signifikant, dock liten, avvikelse för ^{241}Am , vilket givet metodens komplexitet får anses tillfredsställande.

Tabell 6. Aktivitetskvoter ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ vid PSA 70, U för $k=2$.

Kvot tillsatt	Uppmätt/tillsatt aktivitet ^{241}Am	Uppmätt/tillsatt aktivitet $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$
0,00028	$-5,8 \pm 3,7$	$0,999 \pm 0,016$
0,00099	$-0,7 \pm 1,0$	$1,001 \pm 0,016$
0,0030	$0,59 \pm 0,34$	$1,000 \pm 0,016$
0,0099	$0,83 \pm 0,11$	$1,001 \pm 0,016$
0,030	$1,032 \pm 0,046$	$1,000 \pm 0,017$
0,10	$1,020 \pm 0,029$	$0,997 \pm 0,017$
0,31	$0,968 \pm 0,024$	$1,007 \pm 0,020$
0,96	$0,992 \pm 0,018$	$0,994 \pm 0,020$
10	$0,985 \pm 0,016$	$1,045 \pm 0,034$

Tabell 7. Aktivitetskvoter ^{241}Am och $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ vid PSA 95, U för $k=2$.

Kvot tillsatt	Uppmätt/tillsatt aktivitet ^{241}Am	Uppmätt/tillsatt aktivitet $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$
0,00028	$0,65 \pm 0,99$	$0,990 \pm 0,016$
0,00099	$0,88 \pm 0,28$	$0,992 \pm 0,016$
0,0030	$0,945 \pm 0,093$	$0,990 \pm 0,016$
0,0099	$0,982 \pm 0,037$	$0,992 \pm 0,016$
0,030	$1,073 \pm 0,030$	$0,992 \pm 0,016$
0,10	$1,028 \pm 0,026$	$0,998 \pm 0,017$
0,31	$0,999 \pm 0,025$	$1,000 \pm 0,019$
0,96	$1,006 \pm 0,018$	$0,991 \pm 0,020$
10	$0,989 \pm 0,016$	$1,059 \pm 0,036$

Tabell 8. Aktivitetskvoter ^{241}Am och ^{63}Ni vid PSA 70, U för $k=2$.

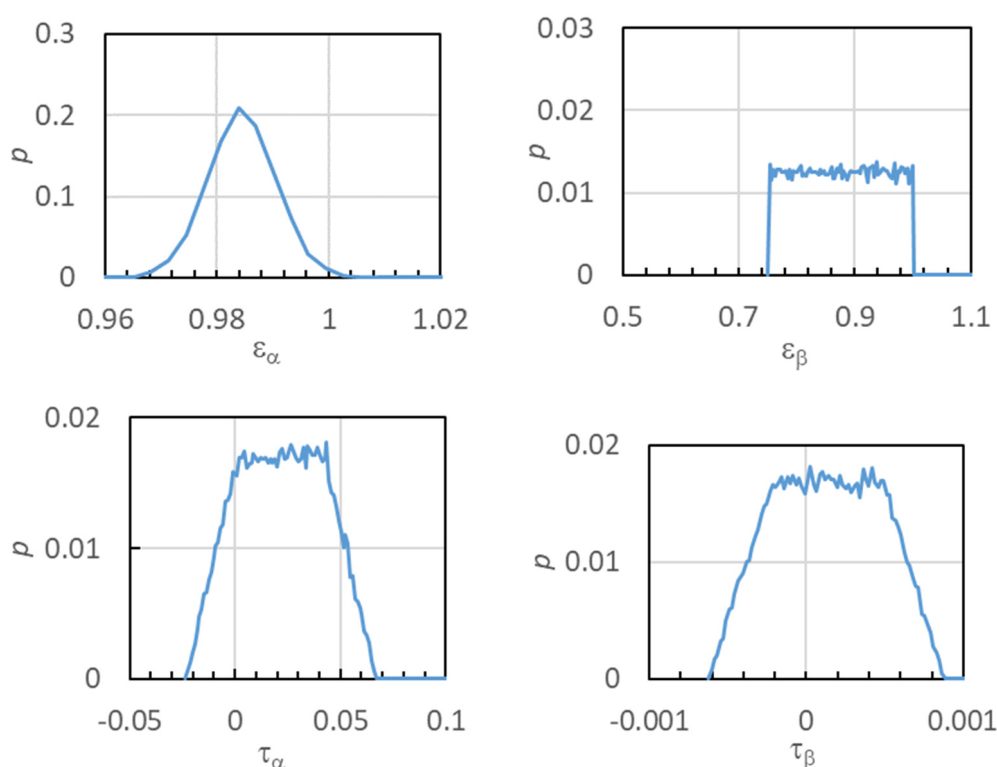
Kvot tillsatt	Uppmätt/tillsatt aktivitet ^{241}Am	Uppmätt/tillsatt aktivitet ^{63}Ni
0,00029	$2,1 \pm 1,8$	$0,983 \pm 0,031$
0,00098	$1,29 \pm 0,55$	$0,985 \pm 0,031$
0,0030	$1,06 \pm 0,18$	$0,979 \pm 0,031$
0,0098	$0,977 \pm 0,060$	$0,986 \pm 0,031$
0,031	$1,035 \pm 0,033$	$0,982 \pm 0,031$
0,10	$0,995 \pm 0,025$	$0,984 \pm 0,032$
0,30	$0,982 \pm 0,024$	$0,982 \pm 0,034$
11	$0,953 \pm 0,015$	$1,128 \pm 0,049$

Tabell 9. Aktivitetskvoter ^{241}Am och ^{63}Ni vid PSA 95, U för $k=2$.

Kvot tillsatt	Uppmätt/tillsatt aktivitet ^{241}Am	Uppmätt/tillsatt aktivitet ^{63}Ni
0,00029	$1,5 \pm 1,6$	$0,991 \pm 0,032$
0,00098	$1,13 \pm 0,49$	$0,990 \pm 0,031$
0,0030	$1,01 \pm 0,16$	$0,986 \pm 0,031$
0,0098	$0,995 \pm 0,055$	$0,989 \pm 0,032$
0,031	$0,997 \pm 0,031$	$0,992 \pm 0,032$
0,10	$1,001 \pm 0,025$	$0,992 \pm 0,032$
0,30	$0,996 \pm 0,025$	$0,999 \pm 0,034$
11	$0,968 \pm 0,015$	$1,150 \pm 0,053$

4.2 Modellering av ε_α , ε_β , τ_α och τ_β

De mäteffektiviteter och felklassificeringsfaktorer som tillämpades i valideringen (se 4.3) och osäkerhetsmodelleringen (se 4.4) modellerades utifrån observerade data per 2021-06-23. Alfamäteffektiviteten modellerades som en normalfördelad parameter ($\varepsilon_\alpha = 0,9829 \pm 0,0060$, $k=1$), och betamäteffektiviteten som en rektangulär fördelning baserat på en minsta, ^{63}Ni , och en högsta, $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, effektivitet ($\varepsilon_\beta = 0,87 \pm 0,12$: medelvärde och halvvärdesbredd). Felklassificeringsfaktorerna τ_α och τ_β modellerades som trapezoidala fördelningar, se teoriavsnittet. Rusconi *et al.* [RUS 2006] modellerade dessa som rektangulära fördelningar, vilket kan vara en bra ansats under förutsättning att osäkerheterna är låga. I det här arbetet var dock osäkerheterna i τ_α och τ_β inte försumbara, vilket motiverade modellering som trapezoidala fördelningar. För τ_α ansattes, baserat på observerade data, en trapezoidal fördelning med medelvärdet 0,0212, halvvärdesbredden 0,0451 och formfaktorn 0,5. För τ_β ansattes en trapezoidal fördelning med medelvärdet 0,000120, halvvärdesbredden 0,000750 och formfaktorn 0,5.⁹ Sannolikhetsfördelningar för mäteffektiviteter och felklassificeringsfaktorer visas i figur 13.



Figur 13. Sannolikhetsfördelningar som beskriver mäteffektiviteter (ε_α och ε_β) och felklassificeringsfaktorer (τ_α och τ_β) baserat på data från kalibreringar (tillgängliga data 2021-06-23).

⁹ En trapezoidal fördelning kan beskrivas på ett flertal sätt. Ett är att konvulera två rektangulära fördelningar eftersom en trapezoidal fördelning är summan av två rektangulära fördelningar med olika halvvärdesbredd (vid lika halvvärdesbredd blir summan en triangulär fördelning). Ett annat sätt är att definiera 'brytpunkterna', och ett tredje sätt är att ange medelvärde, halvvärdesbredd och en formfaktor. Det sista sättet är så man beskriver en trapezoidal fördelning i GUM Workbench (se även [JCGM 2008]).

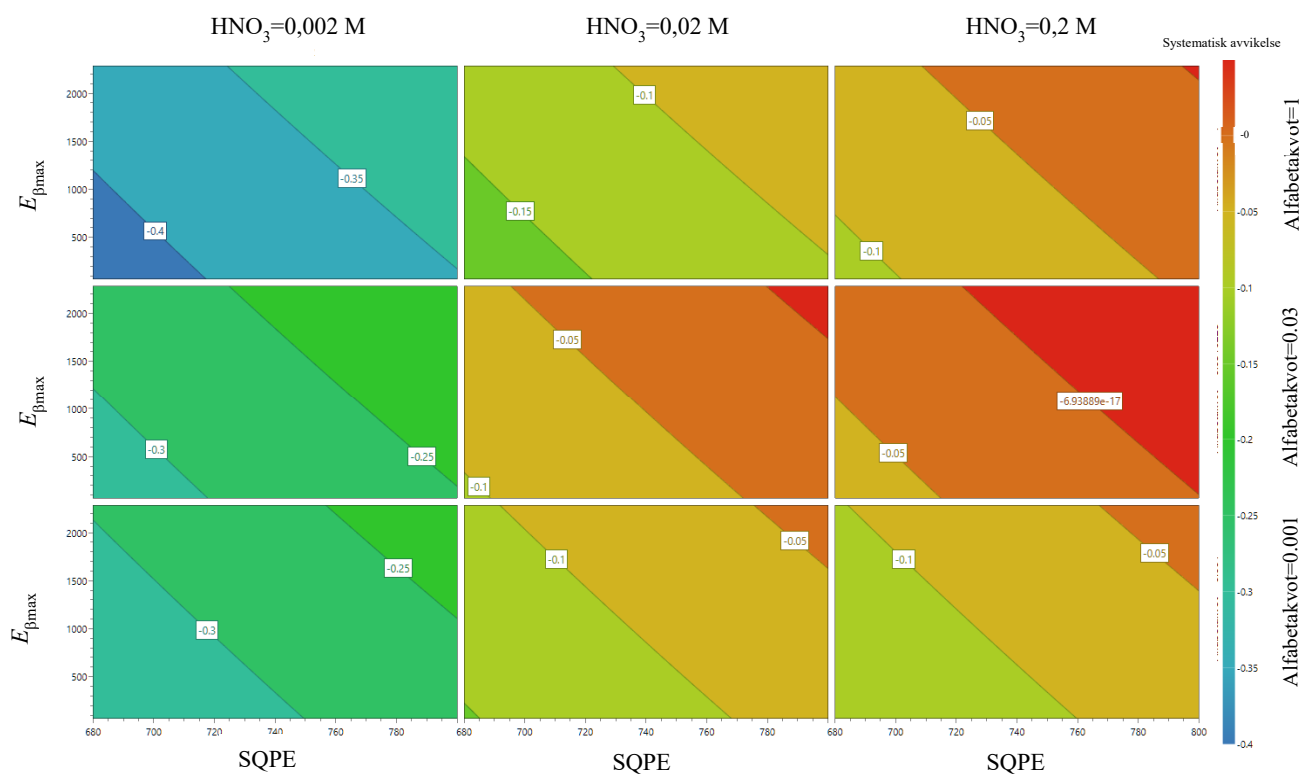
För valideringen beräknades sedan medelvärden och standardosäkerheter för dessa instorheter baserat på fördelningarna i figur 13 [JCGM 2008]. Alfamäteeffektiviteten blev då $0,9829 \pm 0,0060$, betamäteeffektiviteten $0,874 \pm 0,068$, alfafelklassificeringsfaktorn $0,021 \pm 0,021$ och betafelklassificeringsfaktorn $0,00012 \pm 0,00034$, alla $k=1$. För osäkerhetsmodelleringen definierades fördelningarna i figur 13 i GUM Workbench, men osäkerhetspropagering tillämpades vilket är ekvivalent med att definiera dem som ett medelvärde och en standardosäkerhet. För Monte Carlo-beräkning tillämpades dataprovtagning från de antagna fördelningarna.

4.3 Validering av metodens prestanda

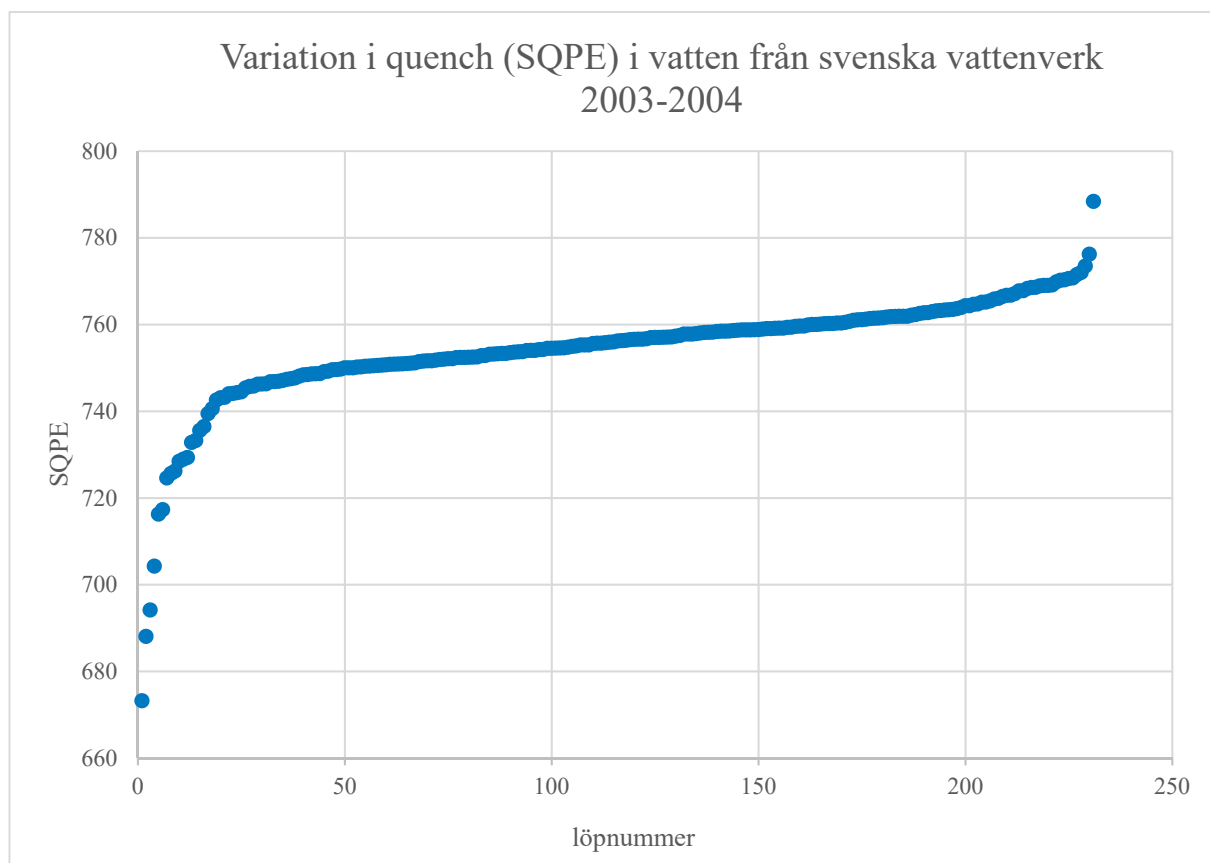
Valideringen med experimentell försöksdesign resulterade i ett mått på den systematiska avvikelsen, vilken är en oundviklig konsekvens av faktorer som, i en totalalfa/totalbeta-mätning med LSC, är okända eller svåra att kontrollera. Mätresultaten i valideringen beräknades med mäteffektiviteterna och felklassificeringsfaktorerna från modelleringen i 0. och radionukliderna (också ^{241}Am , ^{63}Ni och ^{90}Sr) i valideringsproven betraktades som okända, vilket är en normal förutsättning vid totalalfa/totalbeta-mätningar. De påvisade systematiska avvikelserna inkluderades sedan i mätosäkerhetsmodelleringen nedan (4.4).

4.3.1 Systematisk avvikelse- totalalfa

Den systematiska avvikelsen för totalalfaresultatet blev (ett av de 44 resultaten exkluderades eftersom det föll för kriteriet uteliggare), inom de testade intervallen, som lägst -40 % och som högst +9 %. I figur 14 illustreras resultaten i fyra dimensioner. Störst påverkan på avvikelsen gav variationer i HNO_3 -koncentrationen. Den största avvikelsen, från -40 % till ca -20 %, erhöles vid koncentrationen 0,002 M. Låg betaenergi respektive hög quench (lågt SQPE-tal) ökade också den negativa systematiska avvikelsen, dock marginellt jämfört med HNO_3 -koncentrationen. Totalalfabeta-kvotens inverkan på avvikelsen var inte signifikant. Förutom att modellen visar att HNO_3 -koncentrationen bör vara $\geq 0,02$ M, indikerar den att en HNO_3 -koncentration på 0,05 - 0,2 M kan göra metoden robustare, det vill säga mindre känslig för små variationer i nitratkoncentrationen. Om man i metoden säkerställer en HNO_3 -koncentration i provet på $\geq 0,02$ M kommer den systematiska avvikelsen, inom de testade intervallen, ligga mellan -20 % och +10 %. Om dessutom SQPE-talet i proven är > 740 , vilket kan förväntas gälla för > 90 % av dricksvatten från svenska vattenverk (figur 15), blir den systematiska avvikelsen som mest ± 10 %. Resultatet från en totalalfamätning ska då korrigeras genom division med en faktor $k_{\text{biasalfa}}=1,00 \pm 0,10$ (rektangulärt intervall).



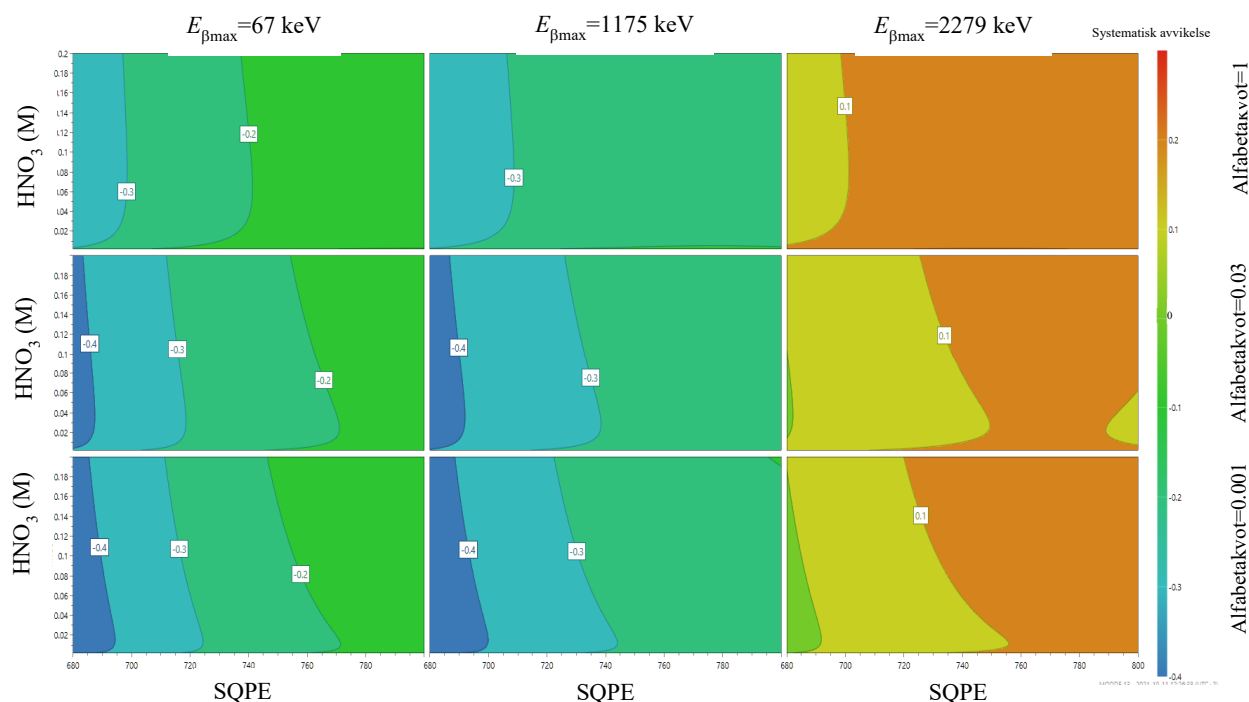
Figur 14. Den systematiska avvikelsen för totalalfamätningen modellerad med experimentell försöksdesign. Färgskalan från blått till rött (-0,4 till + 0,05) visar den systematiska avvikelsen i absoluta tal. Enheterna för $E_{\beta\text{max}}$ är keV. För bättre läsbarhet av figuren hänvisas till den elektroniska versionen av rapporten.



Figur 15. Variation i quench vid LSC-mätning (Quantulus 1220, Ultima Gold AB) av vatten från svenska vattenverk. Tidigare opublicerade data från projektet "Kartläggning av naturligt radioaktiva ämnen i dricksvatten" [FAL 2004]. Data i figuren gäller för ett annat instrument, men av samma modell.

4.3.2 Systematisk avvikelse - totalbeta

Den systematiska avvikelsen för totalbетаresultatet varierade, inom de testade intervallen, mellan -40 % och +20 % (figur 16). Störst inverkan på avvikelsen hade $E_{\beta\max}$ och quench. Resultaten stämmer väl med vad som kan förväntas och dessutom med resultatet från kalibreringarna med olika radionuklider (4.1.2), där man kan se att mäteffektiviteten minskar med minskande betaenergi. Totalalfa/totalbeta-kvotens inverkan på avvikelsen var inte statistiskt signifikant och inte heller HNO_3 -koncentrationen till skillnad mot resultatet för totalalfa ovan. Att man får en systematisk avvikelse är alltså väl känt, men det intressanta här är att vi kan visa hur stor den som mest kan bli inom de givna intervallen. $E_{\beta\max}$ spände över intervallet 67-2279 keV och täcker därmed in huvuddelen av alla förekommande $E_{\beta\max}$ (ej ^3H , som inte ingår i totalbetaaktiviteten [ISO 2018, WHO 2017 och Nucetelli *et al.* [NUC 2012]]). Om SQPE-värdet > 740 , blir den systematiska avvikelsen något lägre: -30 % till +20 %. Resultatet från en totalbetamätning ska då korrigeras genom division med en faktor $k_{\text{bias}\beta} = 0,95 \pm 0,25$ (rektangulärt intervall).



Figur 16. Den systematiska avvikelsen för totalbeta-mätningen modellerad med experimentell försöksdesign. Färgskalan från blått till rött (-0,4 till +0,3) visar den systematiska avvikelsen mellan uppmätt och tillsatt aktivitet i absoluta tal. För bättre läsbarhet av figuren hänvisas till den elektroniska versionen av rapporten.

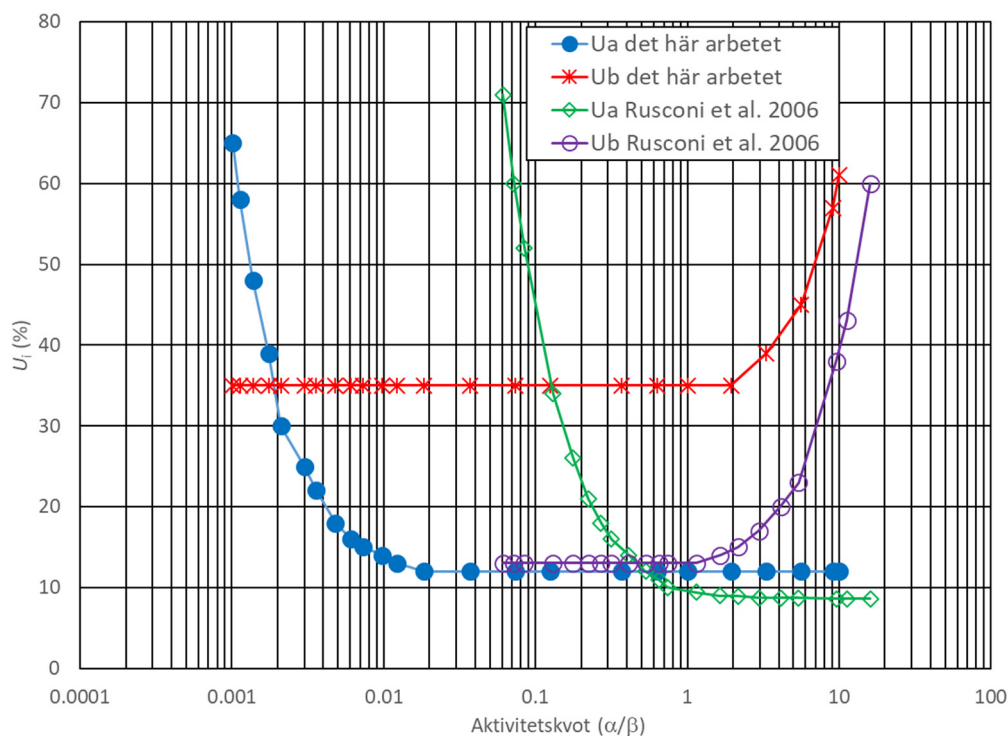
4.4 Mätosäkerhetsmodellering

Att välja PSA-värde utifrån de två felklassificeringskurvornas skärningspunkt, är utifrån mätsynpunkt nödvändigtvis inte optimalt. Skärningspunkten är enbart ett optimum med avseende på att där är de två felklassificeringarna minimala samtidigt (vid högre PSA-värde ökar τ_α och vid lägre ökar τ_β). En ytterligare minskning av betafelklassificeringen (högre PSA-värde) erbjuder då en möjlighet att mäta lägre alfa/beta-aktivitetskvoter eftersom τ_β minskar ytterligare.¹⁰ Osäkerhetsmodellering baserat på data från Rusconi *et al.* [RUS 2006] visar att det med en alfa/beta-aktivitetskvot runt 0,1-0,2 skulle gå att mäta en totalalfaaktivitet med en relativ mätosäkerhet på ca 20-40 %, $k=2$, se figur 17. Vid lägre aktivitetskvoter blir osäkerheten i deras fall för totalalfaaktiviteten för stor för att kunna användas i exempelvis beslutsfattande. I figuren visas också, som ett exempel, osäkerheter för totalalfa- och totalbetaaktiviteter baserat på ett dataset från det här arbetet,¹¹ vilka inkluderar resultatet från valideringen, dvs. korrektionsfaktorer för avvikelse ($k_{\text{biasalfa}}=1,00\pm0,10$, och $k_{\text{biasbeta}}=0,95\pm0,25$, båda modellerade som rektangulära fördelningar). Ett mätresultat före denna korrektion ska divideras med respektive korrektionsfaktorer. Gällande mätning av totalalfaaktivitet visar resultaten att det skulle kunna gå att mäta vid ca två storleksordningar lägre alfa/beta-aktivitetskvot relativt [RUS 2006]. Figuren visar också att detta görs på bekostnad av något lägre maximal alfa/beta-aktivitetskvot. Mätosäkerheten för totalbetaaktivitet blir som lägst ca 35 %, $k=2$, vilket beror på två faktorer: dels på att mäteffektiviteten för totalbeta

¹⁰ Som nämnts ovan, se 2.1, gäller det omvända, möjlighet att mäta höga alfa/beta-aktivitetskvoter, genom att mäta vid lägre PSA-värde än det så kallade optimala.

¹¹ Datasetet bestod av felklassificeringsmätningar för alfa- och betapulser per 2021-06-23.

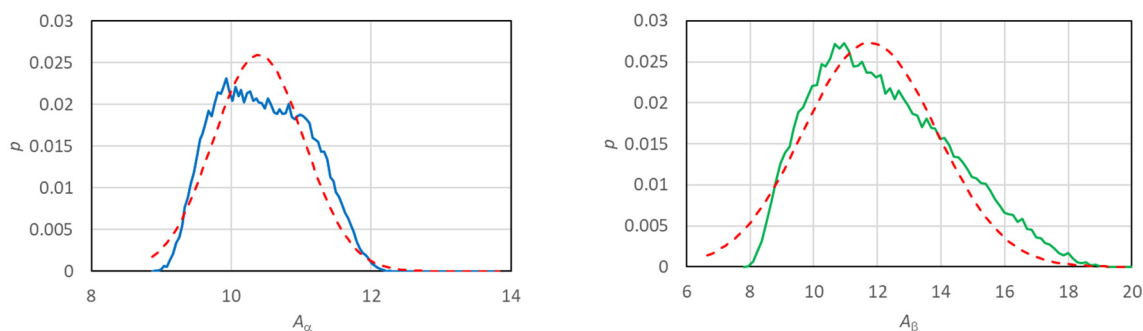
modellerats för att även inkludera lågenergetiska betastrålare, dels på $k_{\text{bias}\beta}$. Vidare visar osäkerhetsmodelleringen att en betaaktivitet kan mätas upp till en alfa/beta-aktivitetskval på ca 4-6, beroende på vilken högsta mätosäkerhet som kan tolereras.



Figur 17. Osäkerhetsmodellering utifrån data från Rusconi et al. [RUS 2006] och utifrån data från det här arbetet. U_a är den modellerade relativa osäkerheten för ett totalalfaresultat och U_b för ett totalbetaresultat, båda för $k=2$.

4.4.1 Monte Carlo-beräkning av mätosäkerhet

Eftersom grundförutsättningarna för att kunna tillämpa osäkerhetspropagering inte alltid är helt uppfyllda (icke-linjäriteter och avvikelse från normalfördelning) för mätning av totalalfa- och totalbetaaktivitet tillämpades även Monte Carlo-beräkning, vilket jämfördes med resultatet från osäkerhetspropagering. Figur 18 visar sannolikhetsfördelningarna för totalalfaaktiviteten, A_α , och totalbetaaktiviteten, A_β , för Monte Carlo-beräkning och för osäkerhetspropagering. I beräkningen användes fördelningarna från avsnitt 4.2. Observerade räknehastigheter i alfa- och betafönstren sattes båda till $10,00 \pm 0,10$ cps, och bakgrunder försumrades. Utöver detta ingick även $k_{\text{bias}\alpha}$ och $k_{\text{bias}\beta}$ i beräkningarna, se 4.3 och 4.4.



Figur 18. Sannolikhetsfördelningar för A_α och A_β då Monte Carlo-beräkning och osäkerhetspropagering tillämpades (Monte Carlo: heldragna kurvor, osäkerhetspropagering: streckade kurvor).

Resultaten i figur 18 visar det man kan förvänta sig för mätmetoden då de sammanlagda osäkerheterna inte begränsas av osäkerheter i räkneshastigheter och/eller bakgrunder. Orsaken till avvikelse från normalfördelning beror i exemplet på att osäkerheterna i $k_{\text{bias}\alpha}$ och $k_{\text{bias}\beta}$ är stora och att aktiviteterna inte är linjära med avseende på dem. I fallet A_β tillkommer dessutom ε_β , som har tilldelats en bred fördelning för att ta hänsyn till eventuella lågenergetiska betastrålare, samt att A_β inte är linjär med avseende på ε_β . Samma observation gjordes i gammaspektrometri då en korrektionsfaktor för effektivitetsöverföring hade en stor osäkerhet [RAM 2018]. Man bör alltså vara medveten om detta problem när metoden tillämpas som en screeningmetod för att fatta beslut om eventuellt efterföljande nuklidspecifika mätningar. Ett sådant beslut bör baseras på att någon av aktiviteterna, på en viss signifikansnivå, inte får vara högre än ett gränsvärde, det vill säga att exempelvis en aktivitet bara får ha 2,5 % sannolikhet att vara högre än ett gränsvärde. Utifrån figur 18 inses det då att 97,5 %-percentilerna kommer vara annorlunda beroende på hur mätosäkerhetsberäkningen genomförs.

5 Slutsatser

Arbetet resulterade i en metod för att mäta totalalfa- och totalbetaaktivitet i dricksvatten. Metoden anpassades för att kunna mäta prov med övervägande betaaktivitet och gav resultat med en acceptabel mätosäkerhet för prov med måttlig quench ($SQPE > 740$) och alfabetakvoter från ca 0,001 till ca 10. Metoden levererar den faktiska mätosäkerheten inklusive systematiska avvikelser som är svåra eller omöjliga att kontrollera.

Mätning av totalalfa- och totalbetaaktiviteter är komplex och resultaten påverkas bland annat av vilka radionuklider som används vid kalibreringen. Till skillnad mot metoder där endast en alfa- respektive en betastrålande radionuklid används vid kalibreringen, användes här flera radionuklider som grund för bestämning av mäteffektiviteter och felklassificeringsfaktorer. Därmed minskades de systematiska avvikelserna.

Modellekvationer för felklassificeringsmodellen som ges i litteraturen visade sig inte ge samma resultat som effektivitetsmodellekvationerna. Om däremot mäteffektiviteter för alfa- respektive betamätning i felklassificeringsmodellen tas som summan av mäteffektiviteterna i respektive MCA visade sig modellerna överensstämma, vilket innebär att mäteffektiviteterna är oberoende av PSA-värdet.

Genom att mäta vid ett högre PSA-värde än vid skärningspunkten mellan felklassificeringskurvorna erhålls lägre betafelklassificering på bekostnad av något högre alfafelklassificering. Man kan då med tillräckligt låg mätosäkerhet mäta totalalfaaktivitet i närvaro av betydligt mer totalbetaaktivitet. Med mätförfarandet som tagits fram i detta arbete, och givet uppmätta felklassificeringsfaktorer och mäteffektiviteter, skulle man kunna mäta totalalfaaktivitet vid en alfa/beta-aktivitetskvote ner till ca. 0,001, jämfört med 0,07 från litteraturdata [RUS 2006].

En blandning av scintillationsvätskorna UGAB och UGF resulterade i en minskande alfafelklassificering med ca en faktor tre (för metodens PSA-värde 95) jämfört med enbart UGAB. Betafelklassificeringen påverkades inte.

Valideringen visade att det för totalalfa- och totalbetamätningar finns en systematisk avvikelse, utöver övriga osäkerhetsbidrag, som måste tas hänsyn till. Totalalfaresultatet påverkades främst av HNO_3 -koncentrationen, men även av quench och betaenergi. Totalbetamätningen visade sig mest känslig för betaenergi och quench. Med ett HNO_3 -koncentrationsintervall från 0,02 - 0,2 M och ett $SQPE$ -värde ($quench$) > 740 , resulterade metoden i en systematisk avvikelse på ± 10 % för totalalfaaktivitet, och -30 % till +20 % för totalbetaaktivitet. Avvikelserna adderas till övriga mätosäkerheter med hjälp av faktorerna $k_{bias\alpha}$ och $k_{bias\beta}$.

Metoden för mätosäkerhetsberäkning (GUMUF vs. Monte Carlo) är viktig att beakta då mätmetoden tillämpas för sitt avsedda ändamål, dvs. som en screeningmetod för att besluta om eventuellt efterföljande nuklidspecifika mätningar.

6 Fortsatt arbete

För att avgöra om metoden kan användas som beredskapsmetod krävs en metod för att beräkna detektionsgräns. Beräkning av kritiska nivåer, beslutsnivå och detektionsgräns, har dock inte behandlats i detta arbete. I litteraturen förekommer detektionsgränser för exempelvis totalalfaaktivitet som är baserade på signalen i alfafönstret från en metodblank. Då ett fokus i det här arbetet har varit att kunna mäta totalalfaaktivitet i närvaro av höga betaaktiviteter blir ett sådant angreppssätt inte relevant eftersom 'bakgrunden' i alfafönstret då även beror på betaaktiviteten och nivån på felklassificeringen av betahändelser, τ_β .¹² Utöver detta har modellekvationen inte utforskats tillräckligt mycket för att kunna angripa problemet kring beräkning av detektionsgränsen/er.

Även om det saknas en metod för att korrekt kunna bestämma detektionsgränsen, går det att avgöra att metoden ger en för hög detektionsgräns för att kunna användas som screeningmetod för att säkerställa att EU:s gränsvärden på 0,1 Bq/l totalalfaaktivitet respektive 1 Bq/l totalbetaaktivitet [EU 2013] inte överskrids. För att nå en lägre detektionsgräns måste metoden vidareutvecklas med avseende på provberedningen samt därefter valideras på nytt.

Beroende på syftet med en mätning av exempelvis dricksvatten behöver metoden vidareutvecklas med avseende på bl.a. radon. I vissa tillämpningar vill man inkludera radon i mätresultatet, medan man exempelvis i en beredskapsmetod vill exkludera radon och dess döttrar. I ISO-standarderna [ISO 2018] föreslås till exempel att provet skakas före mätning för att eventuellt radon ska avgå.

Metoden skulle kunna användas som grund för totalalfa- och totalbetamätning av andra matriser. För det krävs utveckling av provberedningsmetoder och validering. Vid mätning av andra matriser än vatten kommer troligen quench-problematiken att behöva hanteras på annat sätt än i detta arbete, vilket kommer att kräva ytterligare metodutveckling.

¹² Jämför med gammaspektrometri där en detektionsgräns baserad på en bakgrundsmätning är irrelevant om det finns gammastrålande radionuklider i ett prov som emitterar fotoner med högre energi än den man vill bestämma detektionsgränsen för.

7 Referenser

- DeV 2007 DeVol TA, Theisen CD, DiPrete DP, *Effect of quench on alpha/beta pulse shape discrimination of liquid scintillation cocktails*, Health Phys. 2007 May;92(5 Suppl):S105-11.
- EU 2013 *RÅDETS DIREKTIV (Euratom) 2013/51 av den 22 oktober 2013 om fastställande av krav avseende skydd av allmänhetens hälsa mot radioaktiva ämnen i dricksvatten.*
- EU 2016 *RÅDETS FÖRORDNING (Euratom) 2016/52 av den 15 januari 2016 om gränsvärden för radioaktiva ämnen i livsmedel och foder efter en kärnenergiolycka eller annan radiologisk nödsituation och om upphävande av rådets förordning (Euratom) nr 3954/87 och kommissionens förordningar (Euratom) nr 944/89 och (Euratom) nr 770/90.*
- FAL 2004 R.Falk, L Mjönes, P Appelblad, B Erlandsson, G Hedenberg och K Svensson, *Kartläggning av naturligt radioaktiva ämnen i dricksvatten*, SSI 2004:14
- GAC 2017 P. Gaca, P.E. Warwick, I. W. Croudace, *Liquid scintillation counters calibration stability over long timescales*, J. Radioanal. Nucl. Chem., 314, 753, 2017
- GLA 1977 S. Glasstone, P. J. Dolan, *The Effects of Nuclear Weapons, Third Edition*, US Departments of Defence and Energy, 1977
- GUM 2008 ISO/IEC Guide 98-3:2008, *Uncertainty of measurement-Part 3: Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM 1995)*, International Organization of Standardization (ISO), Geneve Switzerland, 2008
- GUM 2009 ISO/IEC Guide 98-3:2009, *Uncertainty of measurement- Part 1: Introduction to the expression of uncertainty in measurement*, International Organization of Standardization (ISO), Geneve Switzerland, 2009
- ISO 2018 SS-EN ISO 11704:2018, *Vattenundersökningar – Totala alfa – och betaaktiviteter- Provningsmetod med vätskescintillationsräkning*, Swedish Standards Institute, Stockholm, 2018
- JCGM 2008 *Evaluation of measurement data-Supplement 1 to the "Guide to the expression of uncertainty in measurement"-Propagation of distributions using a Monte Carlo method*, Joint Committee for Guides in Metrology, JCGM101:2008
- JOB 2015 V. Jobbágy, J. Meresova, E. Dupuis, P. Kwakman, T. Altitzoglou, A. Rozkov, M. Hult, H. Emteborg, U. Wätjen, *Results of a European interlaboratory comparison on gross alpha/beta activity determination in drinking water*, J. Radioanal. Nucl. Chem., 306, 325, 2015

JOH 2017	J. Johansson <i>et al</i> , <i>Översyn av beredskapszoner</i> , SSM 2017:27
NUC 2012	C. Nuccetelli, R. Rusconi, M. Forte, <i>Radioactivity in drinking water: regulations, monitoring results and radiation protection issues</i> , ANN IST SUPER SANTA, VOL. 48, No. 4: 362-373, 2012
PAS 1994	Charles J. Passo, Jr and Gordon T. Cook, <i>LSC Handbook of Environmental Liquid Scintillation Spectrometry</i> , Packard Instrument Company, 1994
PE 2021	<i>PerkinElmer Scintillation Cocktails & Consumables</i> , www.perkinelmer.com (hämtad 2021-10-19)
RAM 2018	H. Ramebäck, P. Lindgren, <i>Uncertainty evaluation in gamma spectrometric measurements: Uncertainty propagation vs. Monte Carlo simulation</i> , Appl Radiat. Isot., 142, 71, 2018
RUS 2006	R. Rusconi, M. Forte, M. Caresana, S. Bellinzona, M.T. Cazzaniga, G. Sgorbati, <i>The evaluation of uncertainty in low-level LSC measurements of water samples</i> , Appl. Radiat. Isot., 64, 1124, 2006
SAR 2020	www.sartorius.com/en/products/process-analytical-technology/data-analytics-software/doe-software/modde (hämtad 2021-10-19)
SLV 2017	Livsmedelsverkets föreskrifter om ändring i Livsmedelsverkets föreskrifter (SLVFS 2001:30) om dricksvatten, Livsmedelsverket
STO 2017	I. Stojković, B. Tenjović, J. Nikolov, N. Todorović, <i>Possibilities and limitations of color quench correction methods for gross alpha/beta measurements</i> , Appl. Radiat. Isot., 122, 164, 2017
THO 2011	M. Thompson, S.L.R. Ellison, <i>Dark uncertainty</i> , Accred Qual. Assur, 16, 483-487, 2011
WAL 2002	<i>Instrument Manual: 1220 Quantulus. Ultra low level liquid scintillation spectrometer</i> , Perkin Elmer 2002
WHO 2017	World Health Organization, <i>Guidelines for Drinking-water quality: fourth edition incorporating the first addendum</i> , ISBN 978-92-4-154995-0, 205-210, 2017
XIA 2020	Xiaolin Hou, Xiongxin Dai, <i>Chapter 2 - Environmental liquid scintillation analysis in Handbook of Radioactivity Analysis: Volume 2 (Fourth Edition)</i> , 2020
ZAP 2012	D. Zapata-García, M. Llauradó and G. Rauret, <i>The implications of particle energy and acidic media on gross alpha and gross beta determination using liquid scintillation</i> , Applied Radiation and Isotopes 70 (2012), 705–711

8 Bilaga 1- Metodbeskrivning

8.1 Provberedning och instrumentinställningar

Provberedning	
Scintillationsburk	Low Diff PE Vial, 20 ml, Antistat
Scintillationsvätska	11 ml Ultima Gold AB + 4 ml Ultima Gold F
Provvolyt och matris	3 ml prov (dricksvatten) syrasatt till 0,02 M HNO ₃

Instrumentinställningar Quantulus 1220

Configuration	Alpha/beta
PAC	Ej PAC (PAC=1)
Coincidence bias	Low
PSA	95
Alfafönster	Kanal 450-1024
Betafönster	Kanal 100/220-1024*
Tid i instrumentet innan mätning	Direktmätning

* Metoden gäller som standard med en betafönsterinställning mellan kanal 100-1024. Finns/misstänks ³H i provet kan betafönstret ställas mellan kanal 220-1024 för att exkludera ³H. Om mätresultatet inte är över en aktionsgräns¹³ då eventuellt ³H inkluderas (kanal 100-1024) behöver inget ytterligare göras. Skulle aktionsgränsen överskridas och det kan misstänkas att ³H finns i provet utifrån spektruminspektion kan istället kanalinställning 220-1024 användas. Bättre resultat skulle kunna erhållas genom att tillämpa kanalinställning 100-1024 och därefter mäta ³H nuklidspecifikt samt subtrahera ³H-aktiviteten från totalbetaaktiviteten.

8.2 Kalibrering

Mäteffektiviteter (ϵ_α och ϵ_β) och felklassificeringsfaktorer (τ_α och τ_β) bestämdes med ²⁴¹Am, ²⁰⁹Po, ⁶³Ni och ⁹⁰Sr/⁹⁰Y. Radionukliderna mättes var för sig och för beräkning av respektive mäteffektivitet summerades pulserna i alfa- och beta-MCA.

Mäteffektiviteten för alfastrålare (ϵ_α) modellerades som en normalfördelad parameter och mäteffektiviteten för betastrålare (ϵ_β) modellerades med en rektangulär fördelning baserad på mäteffektiviteterna för ⁶³Ni och ⁹⁰Sr/⁹⁰Y (max-min).

Alfa- och betafelklassificeringsfaktorer modellerades som trapetzoidala fördelningar baserat på felklassificeringsfaktorer för ²⁴¹Am och ²⁰⁹Po (τ_α) och ⁹⁰Sr/⁹⁰Y och ⁶³Ni (τ_β), inkluderat deras osäkerheter.

Nuklid	ϵ_α	ϵ_β	τ_α	τ_β
Alfa (²⁴¹ Am och ²⁰⁹ Po)	0,9829 ± 0,0119		0,0212 ± 0,0430	
Beta (⁶³ Ni och ⁹⁰ Sr/ ⁹⁰ Y)		0,874 ± 0,145		0,000365 ± 0,000269

Resultaterande mätosäkerheterna är givna med täckningsfaktorn $k=2$.

¹³ Aktionsgräns på 125 Bq/l för totalbeta enligt [ISO 2018] vid en beredskapssituation.

8.3 Beräkna aktivitet

Bestäm totalalfaaktiviteten enligt ekv. (1)

$$A_{\alpha} = \left(\frac{R_{\alpha} - R_{\alpha} \tau_{\beta} - R_{\beta} \tau_{\alpha}}{1 - \tau_{\beta} - \tau_{\alpha}} \right) / \varepsilon_{\alpha} \quad (1)$$

och totalbetaktiviteten enligt ekv. (2)

$$A_{\beta} = \left(\frac{R_{\beta} - R_{\beta} \tau_{\alpha} - R_{\alpha} \tau_{\beta}}{1 - \tau_{\alpha} - \tau_{\beta}} \right) / \varepsilon_{\beta} \quad (2)$$

där R_{α} och R_{β} är de observerade nettoräknehastigheterna (cps) för provet i alfa- respektive betafönster, och τ och ε tas från tabellen ovan.

Inkludera den systematiska avvikelsen till övriga mätosäkerheter med faktorerna:

$$k_{\text{biasalfa}} = 1,00 \pm 0,10 \text{ (rektangulär fördelning)}$$

$$k_{\text{biasbeta}} = 0,95 \pm 0,25 \text{ (rektangulär fördelning)}$$

Detta innebär att resultatet från en totalalfa- och totalbetamätning ska korrigeras genom division med respektive faktor.

8.4 Begränsningar

Matris: dricksvatten.

Metoden gäller för alfa/beta-aktivitetskvoter från ca 0,001 till ca 10.

Quench: SQPE > 740.

Metoden hanterar inte problematiken med ^{222}Rn och radondöttrar

Huvuddelen av ^3H ($E_{\beta\text{max}} = 18,6 \text{ keV}$) och ^{241}Pu ($E_{\beta\text{max}} = 20,8 \text{ keV}$) inkluderas då betafönsterinställningen sätts till 100-1024, men diskrimineras bort helt med fönsterinställningen 220-1024. Inspektera spektrum för att avgöra om provet innehåller signifikanta aktiviteter av dessa radionuklider för att kunna ta beslut om nuklidspecifika mätningar behövs.

FOI är en huvudsakligen uppdragsfinansierad myndighet under Försvarsdepartementet. Kärnverksamheten är forskning, metod- och teknikutveckling till nytta för försvar och säkerhet. Organisationen har cirka 1000 anställda varav ungefär 800 är forskare. Detta gör organisationen till Sveriges största forskningsinstitut. FOI ger kunderna tillgång till ledande expertis inom ett stort antal tillämpningsområden såsom säkerhetspolitiska studier och analyser inom försvar och säkerhet, bedömning av olika typer av hot, system för ledning och hantering av kriser, skydd mot och hantering av farliga ämnen, IT-säkerhet och nya sensorers möjligheter.



FOI
Totalförsvarets forskningsinstitut
164 90 Stockholm

Tel: 08-55 50 30 00
Fax: 08-55 50 31 00

www.foi.se