

# **Genauigkeit von Messwerten, Empfehlungen zur Dokumentation**

DOKUM/GENAUIGK

Bearbeiter:

G. Kanisch  
K. Kirchhoff  
R. Michel  
H. Rühle  
A. Wiechen

# Genauigkeit von Messwerten, Empfehlungen zur Dokumentation

## 1 Vorbemerkungen

Die bei der Überwachung der Umweltradioaktivität gewonnenen Daten über den Gehalt radioaktiver Stoffe in den einzelnen Umweltbereichen sind nach einheitlichen Gesichtspunkten zu dokumentieren und zusammenzufassen. Dabei stehen in aller Regel eine Reihe von Messwerten zur Verfügung, die an verschiedenen Probeentnahmestellen zu unterschiedlichen Zeiten oder von mehreren Laboratorien nach teilweise unterschiedlichen Verfahren gemessen wurden. Stets wird sich ein Schwankungsbereich der Einzelmesswerte ergeben, der unterschiedliche Ursachen haben kann. Im Fall einzelner Messergebnisse ist üblich, den Schwankungsbereich durch die statistische Unsicherheit der Impulzzählung des Messverfahrens (auch als statistischer Zählunsicherheit bezeichnet) zu charakterisieren, ungeachtet der Tatsache, dass die Zählunsicherheit in vielen Fällen den geringeren Anteil der Gesamtunsicherheit der Bestimmungsgröße ausmacht. Andere Ursachen sind z. B. gegeben durch

- Unsicherheiten der Probeentnahme (heterogene Probenmedien oder nichtrepräsentative Proben),
- Unsicherheiten der Probenaufbereitung, insbesondere bei unterschiedlich aufwendigen analytischen Verfahren.

Diese Ursachen liefern in der Regel einen wesentlich höheren Beitrag zur Gesamtunsicherheit einzelner Messwerte und aus einer Messreihe bestimmter Kenngrößen. Die Gesamtunsicherheit ist das Maß für die Qualität des Verfahrens und muß bei der Beurteilung einer Messreihe berücksichtigt werden. Dies gilt insbesondere für die Beurteilung von Zeittrends aufgrund einer Messreihe, die über einen längeren Zeitraum gewonnen wurde.

Sowohl in der „Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI)“ als auch in der „Richtlinie für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (Teil 1: Routinemessprogramm – RMP – und Teil 2: Intensivmessprogramm – IMP –)“ als Bestandteil der „Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS)“ werden allgemeine und grundsätzliche Angaben zur Dokumentation von Messwerten und zur Berichterstattung gemacht (1, 2, 3). Beispielsweise sind zum jeweiligen Messwert die Messunsicherheit (einfache Standardabweichung) oder ggf. die bei der Messung erreichte Nachweisgrenze (Zahlenwert G mit vorangestelltem Kleinerzeichen) anzugeben. Werden diese Werte im Rahmen der Berichterstattung zusammengefasst, zum Beispiel bei der Berechnung von Mittel- oder Medianwerten, soll nach folgenden Vorschlägen für die Praxis verfahren werden.

## 2 Angaben zur Genauigkeit von Messwerten

In der Praxis ist es nicht möglich, beliebig hohe Anforderungen an die Genauigkeit der Messwerte zu erfüllen. Dies ist bei der Überwachung der Umweltradioaktivität, bei der man im Allgemeinen Stichproben untersucht, auch nicht erforderlich. Bei der Darstellung der Messergebnisse in Berichten und Dokumentationen sollte man diesem Umstand dadurch Rechnung tragen, dass bei der Darstellung von Messergebnissen oder Mittelwerten einer Messreihe durch die Angabe von vielen Ziffern nicht eine Genauigkeit vorgetäuscht wird, die nicht erreicht werden kann. Als Beispiel seien die maximalen Unsicherheitsbereiche eines auf- oder abgerundeten Zahlenwertes in Abhängigkeit von der Zahl der signifikanten Ziffern dargestellt:

Anzahl der Ziffern	Wertebereich			Unsicherheitsbereich		
eine Ziffer	1	bis	9	± 50 %	bis	± 5 %
zwei Ziffern	1,0	bis	9,9	± 5 %	bis	± 0,5 %
drei Ziffern	1,00	bis	9,99	± 0,5 %	bis	± 0,05 %

In der Praxis der Aktivitätsüberwachung reicht es demnach im Allgemeinen aus, Messergebnisse mit 2 Ziffern anzugeben.

Durch die Vorgabe der Einheiten, in der die Aktivitätskonzentration oder die spezifische Aktivität gemäß den einzelnen Messprogrammen anzugeben sind, muss bei der Schreibweise der Ergebnisse, wenn man für diese zwei oder drei signifikante Stellen verwendet, auf die Verwendung von Zehnerpotenzen zurückgegriffen werden. Dabei hat sich die Schreibweise ... E+03 oder ... E-02 bewährt (z. B. 3,4 E+03 für  $3,4 \cdot 10^3$  oder 1,8 E-02 für  $1,8 \cdot 10^{-2}$ ).

Zu jedem Messwert ist die einfache Standardabweichung als dessen Unsicherheit anzugeben. In vielen Fällen wird hierfür nur die Zählunsicherheit angegeben, weil diese am Einfachsten abzuschätzen ist. Notwendig ist jedoch die Angabe einer Gesamtunsicherheit, in der alle dem Labor bekannten Unsicherheiten des angewendeten Bestimmungsverfahrens berücksichtigt sind, wie die Unsicherheiten der Probenaufbereitung, der chemischen Trennverfahren, der Kalibrierung der Messgeräte und der Aktivitätsmessung selbst. Einige dieser Beiträge können oft nicht ohne weiteres ermittelt, sondern nur aufgrund von Erfahrungen abgeschätzt werden. Da sich der Beitrag der Probeentnahme infolge Inhomogenität des zu überwachenden Mediums nur schwer ermitteln lässt, muss dieser Beitrag mit einem entsprechenden Hinweis bei der Berechnung der Gesamtunsicherheit weggelassen werden. Anzugeben ist somit die Gesamtunsicherheit, bezogen auf das Ergebnis der einem Labor zur Untersuchung übergebenen Probe. Es wird unterstellt, dass die einzelnen Beiträge zur Gesamtunsicherheit in der Regel statistisch voneinander unabhängig sind. Daher ist ein Schätzwert für die Gesamtunsicherheit unter Berücksichtigung der Einzelunsicherheiten (Standardabweichungen) nach dem Unsicherheitsfortpflanzungsgesetz zu ermitteln und anzugeben.

### 3 Dokumentation von Einzelmesswerten

Im Allgemeinen wird – wie in Abschnitt 2 ausgeführt – bei der Berichterstattung die Dokumentation von zwei signifikanten Ziffern für einen Messwert ausreichend sein. Ein besonderer Fall der Dokumentation von Messergebnissen ist dann gegeben, wenn aufgrund der durchgeführten Messungen radioaktive Stoffe in einer Probe nicht nachgewiesen wurden.

In der DIN-Norm 25482, Teil 1 bis 7 (siehe Anhang), wird zwischen den Begriffen Erkennungs- und Nachweisgrenze unterschieden. Zur Definition und Berechnung dieser Größen wird auf das Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen verwiesen. Danach sind gemessene Werte ausschließlich mit der Erkennungsgrenze zu vergleichen und entsprechend zu dokumentieren. Andererseits gibt die Nachweisgrenze diejenige Zahl an, anhand derer geprüft werden kann, ob ein Messverfahren für einen Messzweck bzw. zur Einhaltung eines vorgegebenen Richtwertes geeignet ist. Die so definierte Nachweisgrenze ist für ein bestimmtes Verfahren zu dokumentieren und durch das Zeichen „<“ zu kennzeichnen.

Bei der Dokumentation von Messwerten war in der Vergangenheit gelegentlich zu beobachten, dass Messwerte nur dann angegeben wurden, wenn der beobachtete Messwert oberhalb der Nachweis- oder Erkennungsgrenze lag. Es ist aber stets notwendig zu dokumentieren, dass Messungen vorgenommen wurden, auch wenn die Ergebnisse unter den jeweiligen Erkennungsgrenzen der betreffenden Messungen liegen. Eine geeignete Größe für die Dokumentation wäre in den Fällen, in denen kein Probenbeitrag nachgewiesen wird, die obere Grenze des Vertrauensbereiches (vgl. Kapitel IV.5 Abschnitt 1) für diese Messung mit vorangestelltem Zeichen „<“. Aus Gründen der Vereinfachung soll aber hier an Stelle dieser oberen Grenze, welche den Bereich des möglichen Wertes der Messgröße nach oben hin begrenzt, der Schätzwert für die Nachweisgrenze  $G$  mit vorangestelltem Zeichen „<“ in der dazugehörigen Einheit angegeben werden (z. B. Co-60  $<1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ). Dieses Verfahren erspart zusätzlichen Rechenaufwand und bedeutet unter sinnvollen Annahmen der statistischen Kenngrößen (vgl. Kapitel IV.5 Abschnitt 2.5 dieser Messanleitungen) eine konservative, d. h. eine auf der sicheren Seite liegende Abschätzung. Darüber hinaus wird man mit dieser Vereinbarung der Praxis der Berichterstattung im Rahmen der Überwachung der Umweltradioaktivität gerecht, da die Angaben der Nachweisgrenzen auch im IMIS-Datenverbund übermittelt werden. Durch die Angabe der Nachweisgrenze kann zusätzlich geprüft werden, ob die Empfindlichkeit des Messverfahrens ausreicht, einen in einem Überwachungsprogramm vorgegebenen Richtwert einzuhalten. Auch diese Information liegt im besonderen Interesse der Öffentlichkeit. Ein Ersatz der Dokumentation von Messwerten mit „<G“ z. B. durch „n. n.“ ist nicht zulässig. Auf keinen Fall darf bei der Berichterstattung für Messwerte unterhalb der Erkennungsgrenze der Wert Null angegeben werden.

Bei gammaspektrometrischen Untersuchungen besteht eine Besonderheit darin, dass bei einer Messung stets auf einen Satz von etwa 20 Gammastrahlern geprüft wird mit dem Ergebnis, dass in vielen Fällen keine Gammastrahler in einer Probe nachgewiesen werden können oder nur Messwerte für ein oder zwei Gammastrahler erhalten werden. Es ist bei der Immissionsüberwachung sicher nicht sinnvoll, in diesen Fällen stets einen Satz von z. B. 20 Werten für die jeweiligen Nachweisgrenzen der Gammastrahler zu dokumentieren, es sei denn, dies wurde in einem Messprogramm ausdrücklich gefordert.

Signifikante Messwerte sind in jedem Fall zu dokumentieren. Im Abschnitt „Bericht-erstattung“ der Ausführungen zum „Routinemessprogramm“ (2) wird gefordert, dass bei jeder Messung zumindest die Nachweisgrenzen für K-40, Co-60 und Cs-137 zu dokumentieren sind. Darüber hinaus ist bei der Bestimmung von einzelnen Radionukliden, insbesondere von H-3, Sr-90 und Alphastrahlern entweder der ermittelte Messwert oder die erzielte Nachweisgrenze anzugeben.

Wurde die auf Gammastrahler zu untersuchende Probe verascht, können leichtflüchtige Radionuklide (z. B. Iodisotope) darin nicht mehr quantitativ bestimmt werden. Die Angabe einer vom Auswerteprogramm ohne Berücksichtigung dieses Sachverhaltes ermittelten Nachweisgrenze ist in diesem Fall irreführend und hat zu entfallen.

Da Nachweisgrenzen ebenso wie Messwerte auf den Zeitpunkt der Probeentnahme oder die Mitte des Sammelzeitraums zu beziehen sind, können diese bei längeren Wartezeiten zwischen Probeentnahme und Messung für kurzlebige Radionuklide (z. B. I-131, Ba-140) unrealistisch hohe Werte annehmen. In diesen Fällen wird empfohlen, auf die Dokumentation von Nachweisgrenzen zu verzichten, wenn die Wartezeit mehr als 6 Halbwertszeiten des Radionuklids beträgt. Dies gilt auch, wenn aus plausiblen Gründen die Anwesenheit bestimmter Radionuklide in einer Probe auszuschließen ist.

## **4 Rechnerische Zusammenfassung von Messwerten**

### **4.1 Zielsetzung der Zusammenfassung**

Bei der rechnerischen Zusammenfassung von Messwerten und „< G“-Werten im Rahmen der Überwachung der Umweltradioaktivität, die in der Berechnung von Mittel- oder Medianwerten bestehen kann, muss man sich über den Verwendungszweck und die Bedeutung dieser berechneten Werte im Klaren sein, da dies die Art der Zusammenfassung bestimmen kann:

- Eine wichtige Frage ist z. B. die, ob aufgrund eines aus mehreren Einzelwerten berechneten Mittel- oder Medianwertes eine Entscheidung darüber zu treffen ist, ob bestimmte Grenzwerte (Aktivität oder Dosis) überschritten wurden. Eine solche Entscheidung hat u. U. weitreichende Konsequenzen und ist ggf. auch von juristischer Bedeutung. Für eine solche Fragestellung sind gegenwärtig Messwerte nach den REI- und IMIS-Messprogrammen für den Routinebetrieb im Bereich der dort geforderten Nachweisgrenzen kaum relevant, da die aus diesen Werten berechneten Aktivitäts- oder Dosiswerte im Allgemeinen weit unterhalb der behördlich festgelegten Grenzwerte liegen. Das bedeutet, dass in der Praxis bei der Mittelwertbildung lediglich Messwerte deutlich oberhalb der Nachweisgrenzen den wesentlichen Beitrag liefern. Die Berücksichtigung von „< G“-Werten bei der Mittelwertbildung ist in diesem Fall nicht relevant.
- Eine andere Frage lautet, inwieweit es mit den im Rahmen des RMP und der REI ermittelten Daten möglich ist, die langfristige Entwicklung der Umweltradioaktivität zu erfassen. In diesem Zusammenhang wird hier davon ausgegangen, dass die in der REI und im RMP geforderten Nachweisgrenzen bei der Durchführung der Messungen von den amtlichen Messstellen und Genehmigungsinhabern stets eingehalten werden. Dennoch werden beim heutigen Stand der Kontamination der Umwelt mit künstlichen radioaktiven Stoffen die Aktivitätskonzentrationen

trationen oder spezifischen Aktivitäten der gemessenen Umweltproben in vielen Fällen unterhalb der geforderten Nachweisgrenzen liegen. In der Praxis liefern daher die Laboratorien in einigen Umweltbereichen meistens Daten, die „< G“ lauten, in wenigen Fällen werden aber auch Messwerte oder „< G“-Werte angegeben, die unter der geforderten Nachweisgrenze liegen. Die amtlichen Messstellen und Genehmigungsinhaber sind jedoch nicht verpflichtet, empfindlicher als gefordert zu messen. Eine Beurteilung der langfristigen Entwicklung der Umweltradioaktivität wäre in diesen Bereichen nur auf der Grundlage besonderer Untersuchungen möglich.

- Die Frage der Zusammenfassung von Daten eines Kollektivs mit Messwerten und „< G“-Werten ist daher mehr von wissenschaftlichem Interesse. Bei der Vielfalt und unterschiedlichen Anzahl der Daten aus den verschiedensten Bereichen der Umweltüberwachung wird es nicht möglich sein, ein einheitliches, für alle Fälle geeignetes Verfahren zur Zusammenfassung dieser Daten anzugeben.

Unter Berücksichtigung dieser Punkte wird empfohlen, bei der Zusammenfassung von Messwerten – wie in den folgenden Abschnitten beschrieben – vorzugehen.

#### 4.2 Behandlung von Daten, die keine Werte „< G“ enthalten

Hierbei handelt es sich um den Fall, dass eine Messwertreihe ausschließlich signifikant nachgewiesene Messwerte, aber keine als „< G“ dokumentierte Werte enthält. Die Berechnung des arithmetischen Mittelwertes  $\bar{x}$  und der 1fachen Standardabweichung  $s$  nach den Gleichungen (1) und (2) ist nur sinnvoll, wenn die Messwerte aus einer normalverteilten Grundgesamtheit stammen.

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n x_i \quad (1)$$

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

In der Praxis beobachtet man allerdings häufig nicht normalverteilte Messwerte. Prinzipiell muss die Art der Verteilung durch einen statistischen Verteilungstest überprüft werden. Hierzu können sowohl graphische Verfahren als auch numerische Verteilungstests herangezogen werden. Die Annahme normalverteilter Daten ist selten gerechtfertigt.

Häufig handelt es sich um logarithmische Normalverteilungen, die vielfach gefunden werden, wenn man den Gehalt natürlich radioaktiver Stoffe in Umweltproben bestimmt. Dann tritt an Stelle des arithmetischen Mittelwertes das geometrische Mittel  $\bar{x}_g$  (Gleichung (3)) und die Standardabweichung  $s_g$  nach Gleichung (4) wird nicht additiv ( $\bar{x} \pm s$ , d. h. 1 s-Bereich von  $(\bar{x} - s$  bis  $\bar{x} + s)$ ), sondern als Faktor angegeben (d. h. 1 s-Bereich von  $\bar{x}_g / s_g$  bis  $\bar{x}_g \cdot s_g$ ):

$$\bar{x}_g = \sqrt[n]{\prod_{i=1}^n x_i} \quad (3)$$

$$s_g = 10^a, \quad \text{mit} \quad a = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n [\log_{10}(x_i) - \log_{10}(\bar{x})]^2}{n-1}} \quad (4)$$

Da in der Praxis aufwendige Verteilungstests nicht durchgeführt werden können, wird empfohlen, Messreihen durch die Angabe des Medians (50 %-Quantil) zusammenzufassen. Zusätzlich sind die verteilungsunabhängig zu bestimmenden 10 %- und 90 %-Quantile anzugeben. Im Falle der logarithmischen Normalverteilung kann der Median rechnerisch sehr einfach durch die Berechnung des geometrischen Mittelwertes näherungsweise bestimmt werden.

Der Medianwert  $x_M$  wird, wenn  $x_i$  die Folge der  $n$  nach der Größe sortierten  $x$ -Werte bezeichnet, wie folgt ermittelt:

$$\begin{aligned} x_M &= x_{(n+1)/2} && \text{falls } n \text{ ungerade} \\ x_M &= \frac{1}{2} (x_{n/2} + x_{(n+2)/2}) && \text{falls } n \text{ gerade} \end{aligned}$$

Der Medianwert kann unabhängig von der Art der vorliegenden Verteilung (Grundgesamtheit) bestimmt werden.

Die Quantile sind dabei nach folgender Definition und Rechenvorschrift zu ermitteln (12): für das der Wahrscheinlichkeit  $P$  (in %) zugeordnete (verteilungsfreie) Quantil (Perzentil)  $x_p$  einer aufsteigend geordneten Folge von  $n$  Einzelmesswerten ergibt sich in Abhängigkeit davon, ob die Zahl  $k = n \cdot P / 100$  ganzzahlig ist oder nicht:

$$k \text{ ist ganzzahlig:} \quad x_p = \frac{1}{2} \cdot (x_k + x_{k+1})$$

$$k \text{ ist nicht ganzzahlig:} \quad x_p = x_{\text{int}(k)+1}$$

(hierbei ist  $\text{int}(k)$  die größte ganze Zahl kleiner oder gleich  $k$ )

Der *Dezilabstand* (Differenz zwischen dem 90 %- und dem 10 %-Quantil) hat einen geringeren Stichprobenfehler als der sog. *Quartilsabstand* (Differenz zwischen dem 75 %- und dem 25 %-Quantil) hat (4). Daher wird ab 10 Messwerten die Angabe der 10 %- und 90 %-Quantile empfohlen.

Der fälschliche Gebrauch des arithmetischen Mittelwertes bei logarithmisch normalverteilten Daten führt zu einer Überschätzung der Standardabweichung mit der Folge, dass wesentlich mehr Daten im Intervall Mittelwert  $\pm$  Standardabweichung ( $\bar{x} \pm s$ ) liegen als für eine Normalverteilung zu erwarten ist (68 % der Messwerte). Allgemein kann man sagen: Wenn in einer Messreihe die Standardabweichung ähnlich groß oder größer als der arithmetische Mittelwert ist, kann dies ein Hinweis darauf sein, dass keine Normalverteilung vorliegt; größere Abweichungen zwischen Median und arithmetischem Mittelwert weisen ebenfalls darauf hin. In allen diesen Fällen ist die Verwendung des Medianwertes anstelle des arithmetischen Mittelwertes zu empfehlen.

Ist eine Verteilung von Messwerten deutlich schiefsymmetrisch, so dass dem Median anstelle des Mittelwertes der Vorzug zu geben ist, ist zu beachten, dass der Median nicht mehr ohne weiteres innerhalb einer „Gauss’schen Fehlerfortpflanzung“ weiterverwendet werden kann, da dessen Unsicherheit sich im allgemeinen Fall nicht durch eine symmetrische Standardabweichung angeben lässt. Für eine Fortpflanzung von Messunsicherheiten kann in solchen Fällen z. B. das numerische „Bootstrap“-Verfahren verwendet werden (5, 6).

Es ist allgemein ratsam, insbesondere aber bei offensichtlich nicht normalverteilten Verteilungen, erst zu überprüfen, ob sich einzelne Meßwertgruppen einer Messreihe anhand weiterer bekannter Merkmale unterscheiden (Mischung mehrerer Verteilungen). Wenn das der Fall ist, wird empfohlen, solche Messwertgruppen, soweit möglich, separat statistisch auszuwerten.

### 4.3 Behandlung von Daten, die Werte „< G“ enthalten

Hierbei handelt es sich um den Fall, dass eine Messwertreihe neben signifikanten Messwerten auch als „< G“ dokumentierte Werte enthält.

Ohne kompliziertere statistische Auswertungen kann ein möglicher Bereich (untere und obere Schranke) für den Mittelwert wie folgt ermittelt werden: Zur Berechnung der unteren Schranke des Mittelwertes werden die als „< G“ dokumentierten Werte mit dem Wert 0, für die Berechnung der oberen Schranke mit dem Wert der Nachweisgrenze  $G$  berücksichtigt. Der Nachteil eines solchen Bereiches für den Mittelwert ist die schlechte Verwendbarkeit in grafischen Darstellungen. Die Angabe einer Standardabweichung ist hierfür nicht möglich. Der Medianwert und das 90 %-Quantil können ohne weiteres angegeben werden, wenn der größte „< G“-Wert noch unterhalb des 50 %-Quantiles liegt.

Verwendbare Kennwerte, wie z. B. Mittelwert, Median, Standardabweichung und Quantile, können mittels statistischer Auswertungen von Meßwertreihen mit „< G“-Werten gewonnen werden (7, 8, 9). Es wird daher empfohlen, ein auf dem Wahrscheinlichkeits-Plot beruhendes Verfahren nach **Helsel und Cohn** (10) zu verwenden, welches im Kapitel STATIS/DOKUM ausführlich erläutert wird.

Die Anwendung des Verfahrens nach Helsel und Cohn (10) erfordert den Einsatz eines Rechenprogrammes. In der Bundesforschungsanstalt für Fischerei wurde ein derartiges Rechenprogramm entwickelt, welches die Berechnung aller oben erwähnter Kennwerte erlaubt. Dieses Programm wurde eingehend getestet, insbesondere wurde geprüft, wie groß die Anzahl von Messwerten sein muss, um das Verfahren einsetzen zu können (11). Folgende Voraussetzungen müssen gegeben sein, um das Verfahren nach (10) anwenden zu können:

- mindestens 4 Messwerte müssen insgesamt vorhanden sein;
- mindestens zwei (besser noch drei) Messwerte müssen signifikant sowie voneinander verschieden sein;
- nicht mehr als 80 % der Werte sollen als <G dokumentiert sein.

Es ist darauf hinzuweisen, dass bei einer Anzahl von weniger als 8 Werten die Zuverlässigkeit der ermittelten Kennwerte nicht besser ist, als diejenige, die mit dem herkömmlichen Ersatzverfahren  $\frac{1}{2} G$  zu erhalten ist.

Sind mehr als 80 % der Werte als „< G“ dokumentiert, ist die Anzahl der „< G“ - Werte so groß, dass für eine Zusammenfassung der Daten nur noch eine Aussage über die Nachweisgrenze gemacht werden kann, die Angabe eines Mittelwertes nach dem Ersatzverfahren  $\frac{1}{2} G$  aber nicht mehr sinnvoll ist. Hierbei werden die Nachweisgrenzen mit ihrem vollem Wert und, sofern vorhanden, signifikante Werte als ein Datensatz aufgefasst, für den nach den üblichen Verfahren statistische Kennwerte – diese allerdings mit einem „<“-Zeichen versehen – bestimmt werden. So ist auch zu verfahren, wenn alle Werte „< G“ -Werte sind.

Es wird dringend davon abgeraten, andere herkömmliche Ersatzverfahren, wie z. B. „0 G“ oder „1 G“, zu verwenden (vgl. (10)). In dem Fall, dass in der Stichprobe eine einzige Nachweisgrenze vorliegt, deren Wert deutlich über dem größten signifikanten Wert liegt, kann das herkömmliche Verfahren mit dem Ersatzwert  $\frac{1}{2} G$  den Mittelwert nach oben ziehen (verzerren), was bei dem Verfahren nach (10) jedoch nicht der Fall ist.

#### 4.4 Behandlung von Ausreißern

Beim Auftreten „nichtplausibler“ Werte in einer Messreihe muss zunächst geprüft werden, ob eine Fehlmessung vorliegt oder ob äußere Einflüsse tatsächlich zu diesem extremen Wert geführt haben. Es ist auch zu prüfen, ob Werte aus statistischen Gründen aus der Messreihe als Ausreißer eliminiert oder ob sie als plausibel akzeptiert, dokumentiert und entsprechend kommentiert werden. Der im verteilungsfreien Fall zu empfehlende Median ist jedoch relativ unabhängig von Ausreißern.

#### 4.5 Dokumentation zusammengefasster Messwerte

Zur Dokumentation der zusammengefassten Messwerte soll das folgende Schema verwendet werden:

Angabe von

- Anzahl aller Messwerte,
- Anzahl der Werte <G,
- kleinste Nachweisgrenze,
- größte Nachweisgrenze,
- Minimalwert,
- Maximalwert,
- arithmetischer Mittelwert mit 1facher Standardabweichung **und**
- Angabe des Medians, dem ab 10 Messwerten die 10%- und 90%-Quantile hinzuzufügen sind,
- ggf. graphische Darstellung der Messreihe, z. B. in der Gestalt eines einfachen Boxplots mit Minimal- und Maximalwert, den 10 %- und 90 %-Quantilen, dem Median und dem arithmetischen Mittelwert.

Bei weniger als 5 Messwerten kann auf die Angabe des Mittel- oder Medianwertes verzichtet werden.

Wird von dem vorgenannten Schema abgewichen, wird im Falle von Messreihen mit als „< G“ angegebenen Werten für die Ermittlung der zu dokumentierenden Minimal- und Maximalwerte vorgeschlagen, dafür nicht nur allein die signifikanten Werte zu verwenden, sondern auch die „< G“-Werte einzubeziehen; bei der Sortierung der Daten nach ihrer Größe sollen die „< G“-Werte mit ihrem Wert G (ohne „<“-Zeichen) berücksichtigt werden. In der Stichprobe mit den Werten 3, < 2, < 1, 8, 5, wären dann < 1 der Minimalwert und 8 der Maximalwert. Als Maximalwert soll jedoch stets der größte signifikant gemessene Wert angegeben werden. Gibt es in einer Messreihe nur „< G“-Werte, tritt an die Stelle des Maximalwertes die größte Nachweisgrenze.

## 5 Bilanzierung von Messwerten

Unter „Bilanzierung“ soll hier die Summierung von Messwerten oder aus Messwerten abgeleiteten Werten verstanden werden. Ziel der Bilanzierung ist es, z. B. eine Aktivitätssumme aus Einzelaktivitäten zu ermitteln, so z. B. für die

- mit dem Abwasser oder der Abluft in einem bestimmten Zeitraum abgeleiteten radioaktiven Stoffe,
- auf einer bestimmten Fläche in einer bestimmten Zeit abgelagerten radioaktiven Stoffe (Fallout-Flächenaktivität),
- vom Menschen in einem bestimmten Zeitraum aufgenommenen Radionuklide.

Bezüglich der Bilanzierung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Fortluft und dem Abwasser aus Kernkraftwerken werden in den entsprechenden Regeln des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 (13) und KTA 1504 (14) detaillierte Vorgaben gemacht. Die Ergebnisse sind jeweils in einem speziellen Berichterstattungsbogen zu dokumentieren, wobei für einzelne Radionuklide oder Radionuklidgruppen neben den im vorgesehenen Berichtszeitraum abgeleiteten Aktivitäten zusätzlich die dabei erreichten Erkennungsgrenzen (Minimal- und Maximalwert) angegeben werden müssen. Die abgeleiteten Aktivitäten sind nur aus Messwerten der Aktivitätskonzentration zu berechnen, die oberhalb der Erkennungsgrenzen liegen, Messwerte unterhalb der Erkennungsgrenze bleiben bei der Bilanzierung unberücksichtigt. Damit ist eine einfache und klare Anweisung für die Durchführung der Bilanzierung gegeben: Addition allein der aus den gemessenen signifikanten Aktivitätskonzentrationen und abgeleiteten Fortluft- bzw. Abwasservolumina berechneten Aktivitätsabgaben.

Die Berechnung der Messunsicherheit als Standardabweichung einer bilanzierten Aktivität erfolgt entsprechend nur unter Berücksichtigung der Werte oberhalb der jeweiligen Erkennungsgrenzen. Dies geschieht nach den Gesetzen der Unsicherheitsfortpflanzung. Dabei ergibt sich die Messunsicherheit  $u$  einer Summe  $a$  ( $a = a_1 + a_2 + \dots + a_n$ ) nach Gleichung (5):

$$u = \sqrt{u_1^2 + u_2^2 + \dots + u_n^2} \quad (5)$$

wobei die Größen  $u_i$  die jeweiligen Unsicherheiten der einzelnen Summanden  $a_i$  bedeuten.

Sofern im Rahmen von Bilanzierungsmessungen bei Kernkraftwerken ein Radionuklid in allen Proben nachweisbar ist, wie z. B. die H-3-Konzentration im Abwasser und gleichermaßen die H-3- und C-14-Konzentration in der Fortluft aus Kernkraftwerken, kann für die bilanzierte Abgabemenge nach obiger Gleichung leicht eine Standardabweichung angegeben werden. Dabei sind die Unsicherheiten des Fortluftstromes und der Abwassermenge klein gegenüber den Unsicherheiten der gemessenen Konzentrationen.

Eine theoretische Einbeziehung der Standardabweichung derjenigen Werte, die unterhalb der Erkennungsgrenze liegen, in die Standardabweichung einer Summe wäre ebenfalls ohne großen Aufwand möglich. Dabei wird den Werten, die unterhalb der Erkennungsgrenze liegen, eine Standardabweichung zugeordnet, die den Wert  $(k_{1-\alpha} \cdot G^*)^{-1}$  hat. (Hierzu wird auf Gleichung (4.2) im Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen verwiesen sowie auf die in den KTA-Regeln (13, 14) aufgeführten Gleichungen zur Berechnung der Erkennungsgrenze.) Dies führt allerdings in den Fällen, in denen nur wenige Messwerte zu einer Summe addiert werden und eine große Anzahl von Messwerten unterhalb der Erkennungsgrenze bei der Berechnung der Standardabweichung der Summe zu berücksichtigen sind, zu unrealistisch hohen Werten der Standardabweichung einer Summe. Ein Beispiel hierfür ist z. B. die Jahresabgabe von Cs-137 mit dem Abwasser eines Kernkraftwerkes, wenn das Radionuklid in zwei Wochenmischproben eines Jahres nachgewiesen wurde und in den restlichen 50 Proben des Jahres die Konzentration unterhalb der Erkennungsgrenze lag.

Die Erfahrung der letzten Jahre hat gezeigt, dass bei der Emissionsüberwachung von Kernkraftwerken nach den Anforderungen der KTA-Regeln 1503.1 und 1504 nur wenige Radionuklide einen Beitrag zur insgesamt abgegebenen Aktivität liefern, obwohl für sämtliche Bilanzierungsmessungen bei der Überarbeitung der KTA-Regeln relativ niedrige Nachweisgrenzen festgelegt wurden.

Unterstellt man bei den Messungen zur Bilanzierung, dass in den Fällen, in denen Radionuklide nicht nachgewiesen werden konnten, diese jeweils in der Größe der nach den genannten KTA-Regeln geforderten Nachweisgrenzen vorhanden sind, liegt man bei der Berechnung der Strahlenexposition auch unter Berücksichtigung der Unsicherheiten der Messungen immer noch deutlich unter den nach § 45 der Strahlenschutzverordnung festgelegten Grenzwerten.

Die Bildung eines Summenwertes ist beispielsweise auch für die Abgabemenge, zu der verschiedene Radionuklide beitragen, vorgesehen (z. B. die Summe aller Spalt- und Aktivierungsprodukte außer Tritium). Da in der Praxis zu einer solchen Summe oft nur wenige Prozent signifikanter Messwerte im Vergleich zur Gesamtzahl der durchgeführten Messungen beitragen, ist die Berechnung der Standardabweichung einer derartigen Summe nicht sinnvoll. Dies gilt vor allem auch deshalb, weil die Berechnung der Strahlenexposition aus den bilanzierten Aktivitäten der einzelnen Radionuklide erfolgt.

Für die Praxis der Dokumentation sei darauf hingewiesen, dass bei der Bilanzierung u. U. Zahlen addiert werden müssen, die sich um Größenordnungen unterscheiden. Die Angabe der Summe in Ziffern des Ergebnisses der Addition muss sich in diesen Fällen an der Genauigkeit der größten Zahlen, die in die Summe eingehen, orientieren. Es kann als Bilanz aus Aktivitäten von z. B. 110 Bq und 0,15 Bq nicht die Zahl 110,15 aufgeführt werden, denn mit dieser Angabe wird eine Genauigkeit vorgetauscht, die nicht vorhanden ist; die Angabe sollte dann 110 Bq lauten.

## Literatur

- (1) Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen. GMBI. 44, Nr. 29 vom 19. August 1993
- (2) Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Richtlinie für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz  
Teil I: Messprogramm für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm). GMBI. 45, Nr. 32 vom 26. September 1994  
Teil II: Messprogramm für den Intensivbetrieb (Intensivmessprogramm). GMBI. 46, Nr. 14 vom 11. April 1995
- (3) Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS). Bundesanzeiger 47, Nr. 200a vom 24. Oktober 1995
- (4) Lienert, H.: Verteilungsfreie Methoden in der Biostatistik. Bd. 1, 1973, Verlag Anton Hain, Meisenheim am Glan
- (5) Büning, H., Trenkler, G.: Nichtparametrische statistische Methoden. 2. Auflage, 1994, Verlag Walter de Gruyter, Berlin, New York
- (6) Efron, B., Tibshirani, R.: Bootstrap Methods for Standard Errors, Confidence Intervals, and Other Measures of Statistical Accuracy. Statistical Science, 1986, Vol. 1, S. 54-77
- (7) Helsel, D. R.: Less than obvious. Environ. Sci. Technol., 1990, Vol. 24, S. 1766-1774
- (8) Gilbert, R. O.: Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring. 1987, Van Nostrand Reinhold Company Inc. New York
- (9) Gilbert, R. O., Kinnison, R. R.: Statistical methods for estimating the mean and variance from radionuclide data sets containing negative, unreported or less-than values. Health Physics, 1981, Vol. 40, S. 377-390
- (10) Helsel, D. R., Cohn, T. A.: Estimation of Descriptive Statistics for Multiply Censored Water Quality Data. Water Resources Research, 1988, Vol. 24, S. 1997-2004
- (11) Kanisch, G.: Verfahren zur statistischen Auswertung von Daten mit als „<“ Nachweisgrenze dokumentierten Werten (in Vorbereitung)
- (12) Lorenz, R. J.: Biometrie – Grundbegriffe der Biometrie. 2. Auflage, 1988, Gustav Fischer Verlag, Stuttgart
- (13) Sicherheitstechnische Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 Messung und Überwachung der Ableitung gasförmiger und aerosolgebundener radioaktiver Stoffe; Messung und Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminabluft bei bestimmungsmäßigem Betrieb. Köln: Carl Heymanns Verlag. 2002-06
- (14) Sicherheitstechnische Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA-1504 Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Wasser. Köln: Carl Heymanns Verlag. 2007-11

## Anhang

## **DIN 25482 – Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen**

- Teil 1: Zählende Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbehandlungseinflusses  
Weißdruck: April 1989  
Beiblatt zu Teil 1 (Anwendungsbeispiele)  
Weißdruck: März 1992
- Teil 2: Zählende spektrometrische Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbehandlungseinflusses  
Weißdruck: September 1992  
Beiblatt zu Teil 2 (Anwendungsbeispiele)  
Weißdruck: September 2000
- Teil 3: Messungen mit linearen analog arbeitenden Zählratenmeßgeräten (Ratemetern)  
Weißdruck: Februar 1993
- Teil 4: Zählende alphaspektrometrische Messungen ohne Berücksichtigung von Probenbehandlungs- und Geräteeinflüssen  
Weißdruck: Dezember 1995
- Teil 5: Zählende hochauflösende gammaspektrometrische Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbehandlungseinflusses  
Weißdruck: Juni 1993  
Beiblatt zu Teil 5 (Anwendungsbeispiele)  
Weißdruck: September 1997
- Teil 6: Zählende Messungen mit Berücksichtigung des Probenbehandlungs- und Geräteeinflusses  
Weißdruck: Februar 1993  
Beiblatt zu Teil 6 (Anwendungsbeispiele)  
Weißdruck: Dezember 1998
- Teil 7: Zählende Messungen an Filtern während der Aktivitätsanreicherung  
Weißdruck: September 1997  
Beiblatt zu Teil 7 (Anwendungsbeispiele)  
in Vorbereitung
- Teil 8: Zählende Messungen an bewegten Objekten  
in Vorbereitung
- Teil 10: Allgemeine Anwendungen  
Weißdruck: Mai 2000
- Teil 11: Thermolumineszenz-Dosimetrie  
Weißdruck: Februar 2003