



Bundesministerium
für Umwelt, Naturschutz
und Reaktorsicherheit

SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

HERSTELLUNG UND UNTERSUCHUNG DEFINIERTER THORON-REFERENZFELDER ZUR KALIBRIERUNG VON THORON-MESSGERÄTEN

BMU - 2003-631



WIR STEUERN UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

BMU – 2003-631

**Herstellung und Untersuchung definierter Thoron-
Referenzfelder zur Kalibrierung von Thoron-
Messgeräten**

Dr. Elisabetta Gargioni

Dr. Dirk Arnold

IMPRESSUM

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht wurde von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) erstellt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmer wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

Herausgeber:

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
Arbeitsgruppe RS I 1
Postfach 12 06 29
53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2003

Zusammenfassung

Eine Thoron-Referenzkammer wurde im Laboratorium „Umweltradioaktivität“ der PTB entwickelt. Stabile und homogene Thoron-Referenzatmosphären zur Kalibrierung von Thoron-Messgeräten werden erzeugt. Aktivitätskonzentrationen in Luft zwischen 1 kBq/m^3 und 10 kBq/m^3 werden mit Hilfe einer Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer charakterisiert. Die Thoron-Referenzatmosphäre ist rückführbar auf das Radonaktivitätsnormal der PTB.

Die Referenzfelder sind an die Radonnormal-Kalibriereinrichtung der PTB angeschlossen, und Kalibrierungen von Thoron-Messgeräten mit Standard-Messunsicherheiten unterhalb von 5% können durchgeführt werden.

A calibration facility for measuring thoron and its decay products has been developed at the PTB. The results for the field characterisation show that ^{228}Th exhalation sources produce a stable thoron atmosphere in the reference chamber. The thoron activity concentration in air ranging from 1 kBq/m^3 to 10 kBq/m^3 can be realized with an overall relative standard uncertainty of less than 5%, and is traceable to the radon gas activity concentration of the PTB.

Inhalt:

1. Einleitung
2. Experimenteller Aufbau
3. Ergebnisse
 - 3.1 *Energiekalibrierung der VIK*
 - 3.2 *Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit der VIK*
 - 3.3 *Charakterisierung des Thoron Referenzfeldes*
 - 3.4 *Homogenitätsuntersuchungen in der Thoron-Referenzkammer*
4. Zusammenfassung und Ausblick
5. Literatur

1. Einleitung

Thoron (^{220}Rn) ist ein Radon-Isotop mit relativ kurzer Halbwertszeit ($T_{1/2} = 55,6 \text{ s}$). Die Konzentration in Wohn- und Arbeitsräumen hängt deshalb stark vom Ort der Exhalation und dessen Abstand zum Messpunkt ab [1-3]. Messungen von Radon-Folgeprodukten in normalen Wohn- und Arbeitsräumen zeigen, dass sowohl die Folgeprodukte des ^{222}Rn als auch die Folgeprodukte des ^{220}Rn in relevanten Aktivitätskonzentrationen vorkommen können. Im neuesten UNSCEAR Report [4] wird der mittlere Beitrag von Thoron und seinen Folgeprodukten zur jährlichen effektiven Dosis von Radon mit 8 % angegeben. Noch höhere Beiträge findet man in Gebieten, wo Granit und Tuff als Baumaterialien verwendet werden. Hier wurden Thoron-Aktivitätskonzentrationen zwischen 100 Bq/m^3 und mehreren kBq/m^3 gemessen [5-7].

Verschiedene Methoden zur Messung von ^{220}Rn und seinen Folgeprodukten wurden in den letzten Jahren entwickelt [8-16]. Die verfügbaren Literaturdaten sind jedoch begrenzt und es gibt wenig internationale Bemühungen zur Qualitätssicherung auf dem Gebiet der Thoronmessungen [17-19]. Die inhomogene Verteilung aufgrund der kurzen Halbwertszeit stellt hierbei eine der größten Schwierigkeiten dar. Zum Beispiel können die langlebigen Folgeprodukte wie das ^{212}Pb ($T_{1/2} = 10,6 \text{ h}$) und das ^{212}Bi ($T_{1/2} = 60,6 \text{ min}$) homogen verteilt sein und von einer Thoron-Freisetzung stammen, die mehrere Stunden zuvor stattgefunden hat. Somit können Folgeproduktkonzentrationen unterschiedlich zu der aktuellen ^{220}Rn -Konzentration sein. Für die Abschätzung des Gesundheitsrisikos durch Thoron-Folgeprodukte müssen daher sowohl die Folgeprodukt- als auch die Thoron-Aktivitätskonzentrationen gemessen werden [15,20].

Die Messgrößen und die Einheiten zur Abschätzung des Gesundheitsrisikos durch Radon-Isotope in Wohn- und Arbeitsräumen sind im ICRP Report Nr. 50 beschrieben [21]. Die Messgrößen sind die Aktivitätskonzentration c_A in Bq m^{-3} und für die Folgeprodukte der Gleichgewichtsfaktor F . *Der Gleichgewichtsfaktor beschreibt das Verhältnis zwischen der gewichteten und gemittelten Radon-Folgeprodukt-Aktivitätskonzentration in Luft $c_{A,eq}$ und der Radon- Aktivitätskonzentration c_A und ist definiert als $F = c_{A,eq} / c_A$.*

Im Fachlaboratorium „Umweltradioaktivität“ der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB), wurde im Rahmen des Forschungsvorhabens StSch 4255 ein Messsystem für Thoronmessungen aufgebaut. Das Messsystem besteht aus einer Referenzkammer aus Edelstahl in der, mittels einer ^{228}Th -Exhalationsquelle, Thoron-Referenzfelder erzeugt werden. Das Messsystem erlaubt Kalibrierungen von aktiven und passiven Detektoren in einem Aktivitätskonzentrationsbereich c_A von 1 kBq/m^3 bis 10 kBq/m^3 mit einer relativen Standard-Messunsicherheit von weniger als 5%.

2. Experimenteller Aufbau

Das Messsystem (Abbildung 1) besteht aus einer Referenzkammer aus Edelstahl mit einem Volumen von $0,1 \text{ m}^3$, in der, mittels einer ^{228}Th -Exhalationsquelle, Thoron-Referenzfelder erzeugt werden. Ein Ventilator sorgt für eine homogene Verteilung des Thorongases. Eine stabile und homogene Atmosphäre ist die Grundlage einer Thorongas Kalibriereinrichtung. Mehrere ^{228}Th -Exhalationsquellen wurden im Labor „Aktivitätseinheit und Messverfahren“ der PTB hergestellt und deren ^{228}Th -Aktivität bestimmt. Die ^{228}Th -Aktivitäten der *elektrodeponierten* Quellen liegen zwischen 1 kBq und 10 kBq und sind auf die Aktivitätsnormale der PTB rückgeführt. Durch die Verwendung elektrodeponierter Quellen wird das Kontaminationsrisiko im Vergleich zur Verwendung flüssiger Quellen oder Filterpräparaten deutlich gesenkt [18,23]. Für die Erzeugung einer bekannten und homogenen Atmosphäre wird eine Quelle mittig am Boden des Messvolumens platziert.

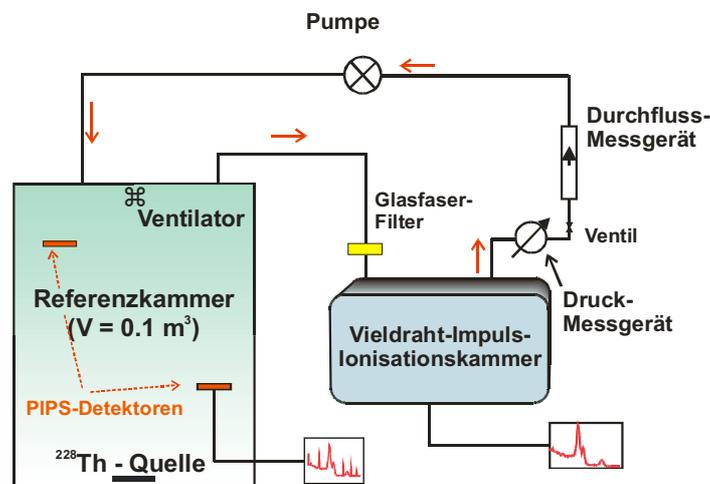


Abbildung 1. Aufbau des Thoron-Referenzmesssystems der PTB.

Durch die Messung des ersten Thoron-Folgeprodukts ^{216}Po ($T_{1/2} = 0,15 \text{ s}$) mit Halbleiter-Detektoren (PIPS*) an verschiedenen Positionen innerhalb der Referenzkammer wird die homogene Verteilung des Thoron-Feldes überwacht [24].

Die Charakterisierung der Thoron-Referenzatmosphäre erfolgt über eine Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer (VIK) [25-27], die sich in einem radondichten Gehäuse befindet und über einen Luftein- und -auslass und Schlauchverbindungen mit der Referenzkammer verbunden ist. Ein Glasfaserfilter am Eingang der VIK stellt sicher, dass nur das Thorongas in das Messgerät gelangt. Das Prinzip der Ionisationskammer beruht darauf, dass die durch ein ionisierendes Teilchen (zum Beispiel durch ein Alphateilchen aus dem Zerfall eines Radon- oder Thoronatoms) in Luft erzeugten Ladungsträgerpaare durch ein elektrisches Feld ohne Gasverstärkung getrennt, gesammelt und anschließend gemessen werden.

Im Feldstärkebereich der Ionisationskammer ist die Anzahl der gesammelten Ladungen proportional zu der Energie des Alpha-Teilchens, das sie erzeugt hat. Durch Integration der Ladungen in den Ladungsimpulsen, die die Elektroden erreichen, kann die Energie der Alpha-Teilchen gemessen werden. Die zu messenden Stromimpulse sind sehr klein (ca. 1 fA). Entscheidend für die Spektrometrie der Alpha-Teilchen ist, dass die Ladungen, die durch die Strahlung

* aus dem Englischen *Passivated-Implanted Planar Silicon*

erzeugt werden weder rekombinieren noch vervielfältigt werden, d.h. es findet keine Gasverstärkung V statt ($V = 1$). Die Energieauflösung der mit der VIK gemessenen Alpha-Spektren beträgt 0,3 MeV im Bereich 5-8 MeV.

Weiterhin muss eine homogene Gasverteilung in der VIK gewährleistet sein. Bei ^{222}Rn Messungen ist dies aufgrund des hohen Radon-Diffusionskoeffizienten in Luft ($D = 0,12 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$) und der relativ langen Halbwertszeit ($T_{1/2} = 3,82 \text{ d}$) immer der Fall, während die ^{220}Rn Verteilung im Fall einer niedrigen Flussrate durch die VIK inhomogen sein kann. Der Durchfluss durch die Ionisationskammer und der statische Druck werden daher gemessen und gezielt verändert und sind Gegenstand systematischer Untersuchungen.

3. Ergebnisse

3.1 Energiekalibrierung der VIK

Die mit der VIK gemessenen ^{222}Rn und ^{220}Rn Spektren sind in Abb.2 dargestellt. Beide Messungen wurden in einer reinen ^{222}Rn bzw. ^{220}Rn Atmosphäre durchgeführt. Aufgrund der hohen Energieauflösung kann die Energiekalibrierung mit beiden Radon-Isotopen und ihren Folgeprodukten parallel durchgeführt werden. Die Auswertung der gemessenen Alpha-Spektren erfolgt durch die Anpassung von Gaussfunktionen und einer halb empirischen Funktion. Diese Funktion erfasst u.a. das Ansprechvermögen des Detektors für Alpha-Teilchen, die nicht ihre gesamte Energie im Detektorvolumen deponieren.

Mit Hilfe der Anpassung werden die Position, die Halbwertsbreite und die Fläche der Gaussfunktionen bestimmt. Diese Parameter entsprechen der Energie der nachgewiesenen Alpha-Teilchen, der Energieauflösung der VIK und ihrer Nachweiswahrscheinlichkeit für die Radon-Aktivitätskonzentration.

Die Radon-Folgeprodukte scheiden sich sehr schnell auf den Drähten der Ionisationskammer ab. Der Raumwinkel, mit dem die Folgeprodukte im Detektorvolumen nachgewiesen werden, ist, unter Gleichgewichtsbedingungen, um einen Faktor 2 kleiner als der Raumwinkel beim Nachweis des Radongases. Daher ist die Höhe des *Full-Energy-Peaks* von ^{218}Po bzw. ^{216}Po um einen Faktor 2 niedriger im Vergleich zu dem entsprechenden Radon-Peak. Die höherenergetischen Alpha-Zerfälle der Folgeprodukten ^{214}Po bzw. ^{212}Po haben größere Reichweite in Luft und damit eine niedrigere Wahrscheinlichkeit, ihre gesamte Energie im Detektor zu deponieren. Daraus ergibt sich eine noch weiter reduzierte Peak-Höhe im Spektrum. Das feste Verhältnis der Peak-Höhen im Spektrum wird bei der Anpassung berücksichtigt.

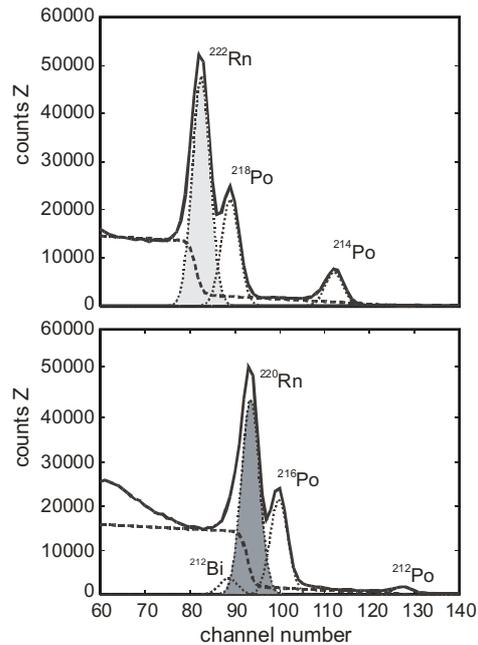


Abbildung 2. Mit der VIK gemessene Alpha-Spektren. Die Zahl der Radon-Netto-Impulse im Spektrum (in hellgrau) kann auf die Radon-Aktivitätskonzentration zurückgeführt werden (Gleichung 2). Mit Hilfe des Kalibrierfaktors k_e wird die Zahl der Thoron-Netto-Impulse (in dunkelgrau) und damit die Thoron-Aktivitätskonzentration an die Aktivität des Radongasnormals angeschlossen (Gleichung 3).

Als Funktion für die Energiekalibrierung erhält man:

$$E_\alpha(x) = ax - b \quad (1)$$

wobei x die Kanalnummer und E_α die Energie der Alpha-Teilchen in keV sind. Für die VIK ergeben sich $a = 73,4(5)$ keV und $b = 557(51)$ keV. Die Abweichungen im Residuum der linearen Energiekalibrierung sind im Energiebereich 5 MeV – 9 MeV kleiner als 40 keV (siehe Abb. 3).

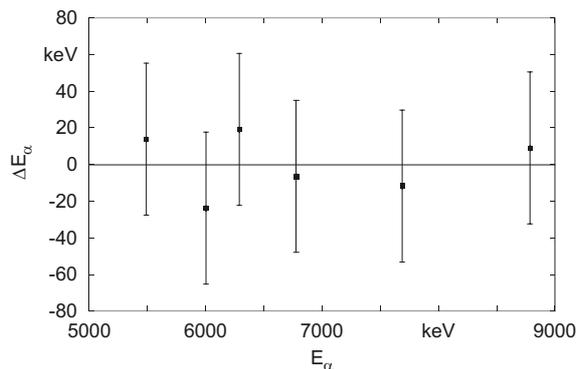


Abbildung 3. Residuum der linearen Energiekalibrierung der VIK als Funktion der Energie der Alpha-Teilchen von ^{220}Rn , ^{222}Rn und deren Folgeprodukten. Aufgetragen ist die Energiedifferenz $\Delta E_\alpha = E_{\alpha,\text{lit}} - E_{\alpha,\text{cal}}$ über den Literaturwerten der α -Energie $E_{\alpha,\text{lit}}$ [28].

3.2 Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit der VIK.

Die VIK wird in der Radonnormal-Kammer der PTB mit einem Radonaktivitätsnormal bezüglich der ^{222}Rn -Aktivitätskonzentration kalibriert [29,30]. In der Radonnormal-Kammer wird eine Referenzatmosphäre mittels eines Radonaktivitätsnormals und des definierten Volumens der Kammer erzeugt. Die ^{222}Rn -Aktivitätskonzentration zum Zeitpunkt der Kalibrierung t_c ist über die Aktivität des Gasnormals definiert und nimmt, dem Zerfallsgesetz folgend, exponentiell ab. Der Kalibrierfaktor für die Nachweiswahrscheinlichkeit k_ε in m^{-3} stellt den Zusammenhang zwischen Zählrate $Z(^{222}\text{Rn})/t$ in s^{-1} und Radon-Aktivitätskonzentration $c_A(^{222}\text{Rn})$ in Bq/m^3 zum Zeitpunkt t_c dar:

$$k_\varepsilon = \frac{c_A(^{222}\text{Rn})}{Z(^{222}\text{Rn})/t - Z(bg)/t} \quad (2)$$

$Z(bg)/t$ in s^{-1} entspricht der Zählrate des Untergrundes im Spektrum, aufgrund der Kontamination des Gerätes mit dem langlebigen Radon-Folgeprodukt ^{210}Po .

k_ε wurde für Radon-Aktivitätskonzentrationen im Bereich von $1 \text{ kBq}/\text{m}^3$ und $9 \text{ kBq}/\text{m}^3$ bestimmt. Bei diesem Verfahren werden Totzeit-Einflüsse und eventuelle Nichtlinearitäten des Detektors (siehe Abb. 4) direkt berücksichtigt. Dadurch lässt sich die gesamte Messunsicherheit erheblich reduzieren.

Die Kalibrierung der VIK bezüglich der ^{222}Rn -Aktivitätskonzentration wurde auch im Rahmen der Standard-Prozedur an der Radonnormal-Kammer durchgeführt [31]. Die Messgeräte-Anzeige c_t in Bq/m^3 (gemittelt über einen Zeitraum von 10 Minuten) wurde während einer Messdauer von 50 Stunden aufgenommen und auf den Wert $c_t(t_c)$ zum Zeitpunkt t_c extrapoliert. Die Extrapolation erfolgt durch Anpassung einer exponentiellen Funktion an die Messpunkte in einem Zeitintervall von 24 Stunden (siehe Abb. 4). Der Kalibrierfaktor des Gerätes ist in diesem Fall:

$$k_t = \frac{c_A(^{222}\text{Rn})}{c_t(t_c) - c_{t,bg}} \quad (3)$$

wobei $c_{t,bg}$ die Anzeige des Gerätes aufgrund der unvermeidbaren Kontamination mit ^{210}Po ist.

Die beiden Verfahren werden in Tabelle 1 für zwei verschiedene Aktivitätskonzentrationen verglichen. Die Werte von k_t bleiben konstant innerhalb der Messunsicherheit, während die relative Abweichung der Werte von k_ε circa 15% beträgt. Diese Abweichung ist zu erwarten, da Totzeit-, Summations- und Nichtlinearitätseffekte des Detektors sich auf k_ε auswirken, während sie durch eine geräteinterne Korrektur bei der Bestimmung von k_t bereits berücksichtigt sind.

$c_A(^{222}\text{Rn})$ in Bq m^{-3}	k_ε in m^{-3}	k_t
8730 ± 220	1830 ± 50	$0,973 \pm 0,025$
988 ± 23	2100 ± 50	$0,982 \pm 0,027$

Tabelle 1. Vergleich zwischen den mit Gleichungen 2 und 3 bestimmten Kalibrierfaktoren der VIK k_ε und k_t , für zwei verschiedene Radon-Aktivitätskonzentrationen.

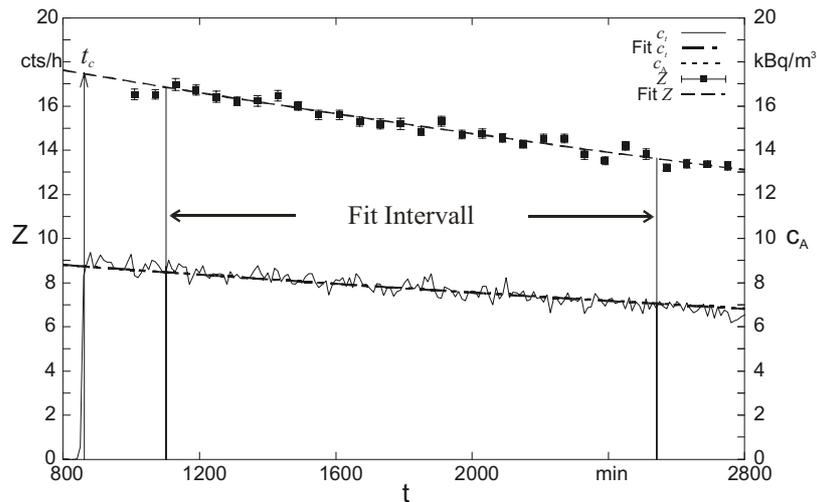


Abbildung 4. Darstellung eines Beispiels der Verfahren für die Bestimmung von k_ε und k_t für die VIK in der Radonnormal-Kammer der PTB (siehe Text). Angegeben ist der Zeitpunkt t_c , die Messgeräte-Anzeige c_t der VIK (dünne Linie), die aus den Spektren ermittelte ^{222}Rn -Zählrate (Punkte) und die an die zwei Messreihen angepassten Kurven. Der berechnete Zeitverlauf der ^{222}Rn -Aktivitätskonzentration ist ebenfalls dargestellt.

Die Energien der Alpha-Teilchen von ^{220}Rn und seinen Folgeprodukten liegen im selben Bereich wie die von ^{222}Rn und seinen Folgeprodukten. Daher kann geschlossen werden, dass die Nachweiswahrscheinlichkeit der VIK für die zwei Radon-Isotope gleich ist. Diese Annahme wird vom Messprinzip und der Geometrie des Gerätes gerechtfertigt.

3.3 Charakterisierung des Thoron Referenzfeldes

Die Bestimmung der Thoron-Aktivitätskonzentration erfolgt unter der oben beschriebenen Annahme, dass die Nachweiswahrscheinlichkeit der VIK für ^{222}Rn und ^{220}Rn Messungen gleich ist. Damit lässt sich die ^{220}Rn -Aktivitätskonzentration aus der ^{220}Rn -Zählrate berechnen:

$$c_A(^{220}\text{Rn}) = k_Q k_\varepsilon \left(\frac{Z(^{220}\text{Rn})}{t} - \frac{Z(\text{bg})}{t} \right) \quad (4)$$

Somit ist die ^{220}Rn -Atmosphäre direkt an die ^{222}Rn -Referenzatmosphäre der Radonnormal-Kammer der PTB angeschlossen. Das Verfahren liefert den korrekten Wert der Thoron-Aktivitätskonzentration wenn die Zählraten von $Z(^{222}\text{Rn})/t$ und $Z(^{220}\text{Rn})/t$ die selbe Größenordnung besitzen und das Thorongas gleichmäßig im

Detektorvolumen verteilt ist. Der geometrische Korrekturfaktor k_Q trägt der möglichen inhomogenen Verteilung des Thorons in der VIIK, aufgrund der kurzen Halbwertszeit, Rechnung. Dieser Effekt kann nicht vernachlässigt werden, wenn der Luftdurchsatz so klein ist, daß sich das Gas nicht homogen im Detektor verteilt, bevor es zerfällt. In diesem Fall treten große Konzentrationsgradienten am Einlass des Detektors auf und die Anzahl der detektierten Alpha-Teilchen pro Raumwinkel nimmt drastisch ab. Die Auswirkung der kurzen Halbwertszeit auf die Messung wird durch das gezielte Variieren des Durchflusses durch die Ionisationskammer systematisch untersucht. Der Zusammenhang zwischen statischem Druck und Durchfluss für den in Abb.1 dargestellten Messaufbau ist in Gleichung 5 beschrieben:

$$\Delta p = a_1 Q - b_1 Q^2 \quad (5)$$

mit Δp : Variation des statischen Drucks im Messsystem und Q : Volumenstrom durch den Detektor.

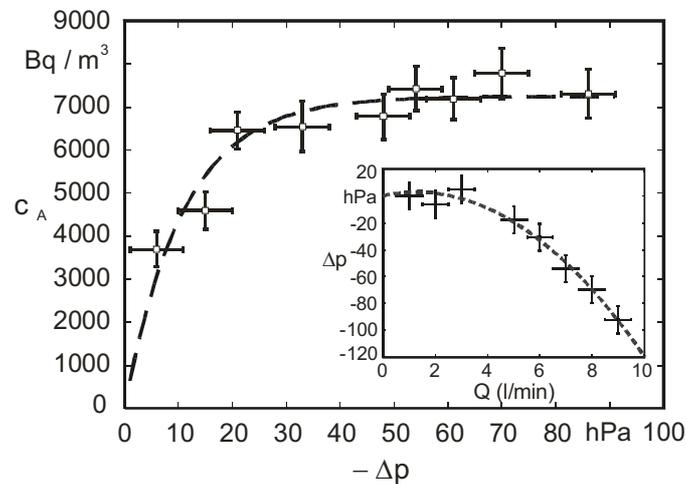


Abbildung 5. Thoron-Aktivitätskonzentration im Referenzvolumen, als Funktion des Luftvolumenstroms Q am Auslass der VIIK (siehe Text). Die Messungen wurden bei einem Luftdruck $p = 1000$ hPa durchgeführt. Die gestrichelten Linien dienen nur als Anhaltspunkt für die Augen.

Beide Größen, Δp und Q werden am Auslass der VIIK gemessen. Für den hier beschriebenen Messaufbau betragen $a_1 = 1,55(68)$ hPa min/l und $b_1 = 1,26(9)$ (hPa min/l)². In Abb. 5 ist die Thoron-Aktivitätskonzentration als Funktion des Volumenstroms am Auslass der VIIK dargestellt. Ist der Volumenstrom kleiner als $Q_{sat} \sim 7$ l/min wird das Thorongas nicht mehr homogen in der VIIK verteilt und der bei der Messung auftretende systematische Fehler kann bis zu 50 % betragen. Für einen größeren Volumenstrom kann angenommen werden, dass ²²⁰Rn gleichmäßig und homogen im aktiven Volumen verteilt ist und die Aktivitätskonzentration den Sättigungswert $c_{A,sat}$ erreicht.

In Tabelle 2 ist als Beispiel das Unsicherheitsbudget für eine Messung der Aktivitätskonzentration in der Thoron-Referenzkammer zusammengefasst. Die Messung wurde mit der VIIK für eine Messzeit von $t = 3600$ s und ein Volumenstrom am Auslass $Q = 5$ l/min durchgeführt. Die Aktivität der ²²⁸Th-Exhalationsquelle beträgt in diesem Fall ca. 10 kBq. Die relative mit $k = 2$ erweiterte Messunsicherheit beträgt 6,6%. Es ist deutlich zu sehen, dass der größte Beitrag zur

Gesamtunsicherheit durch die Unsicherheit der ^{222}Rn -Aktivitätskonzentration verursacht wird.

Abb. 6 zeigt die Zeitverläufe der ^{220}Rn -Aktivitätskonzentration in der Referenzkammer, wenn die Aktivität der Exhalationsquelle ca. 10 kBq (obere Kurve) bzw. 0.9 kBq (untere Kurve) beträgt. Der über 50 Stunden gemittelte Wert der Aktivitätskonzentration beträgt 8.89(24) kBq/m³ bzw. 1.35(4) kBq/m³. Während bei $c_A(^{220}\text{Rn}) = 8.89 \text{ kBq/m}^3$ die Atmosphäre innerhalb der Standard-Messunsicherheit konstant ist, kann die Abweichung der Einzelwerte bei 1.35 kBq/m³ größer als 10 % sein. Die niedrige Zählrate in den α -Spektren ($Z(^{220}\text{Rn})/t \sim 0.5 \text{ s}^{-1}$), und die daraus resultierenden großen statistischen Schwankungen spielen in diesem Fall eine größere Rolle.

Größe	Wert	Standard-Mess- Unsicherheit	relativer Beitrag
$c_A(^{222}\text{Rn})$	8730 Bq m ⁻³	220 Bq m ⁻³	0,596
$Z(^{222}\text{Rn})$	17600 ⁽¹⁾	100	0,029
$Z(bg)$	430 ⁽¹⁾	20	0,001
$Z(^{220}\text{Rn})$	12500	230	0,329
t	3600 s	5 s	0,002
k_Q	1,347	0,009	0,044
$c_A(^{220}\text{Rn})$	8560 Bq m ⁻³	280 Bq m ⁻³	

(1) Aus 24 Messungen zu je eine Stunde berechnet

Tabelle 2. Unsicherheitsbudget der Thoron-Aktivitätskonzentration in der Referenzkammer.

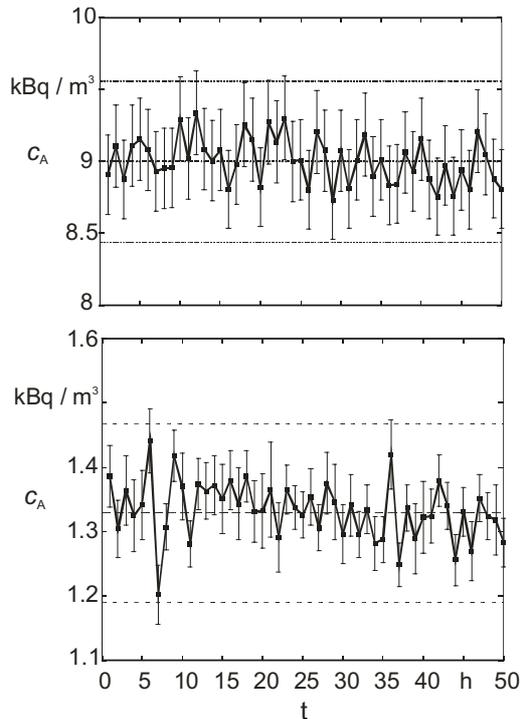


Abbildung 6. Zeitverlauf der ^{220}Rn -Aktivitätskonzentration in der Referenzkammer. Die Messungen wurden mit der VIK für zwei verschiedene Atmosphären durchgeführt. Der Mittelwert über 50 Stunden und die maximale Abweichung vom Mittelwert (10% für $c_A = 1,35 \text{ kBq/m}^3$ bzw. 4% für $c_A = 8,89 \text{ kBq/m}^3$) sind dargestellt.

3.4 Homogenitätsuntersuchungen in der Thoron-Referenzkammer.

Mit Hilfe zweier PIPS-Detektoren können die Alpha-Teilchen der Thoron-Folgeprodukte gemessen werden. Abbildung 7 zeigt ein typisches Alpha-Spektrum, das in der Referenzkammer mit einem PIPS-Detektor aufgenommen wurde. Das erste Folgeprodukt ^{216}Po scheidet sich sehr schnell auf den Detektor-Oberflächen ab und gibt aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von 0,15 s einen qualitativen Hinweis über die örtliche Verteilung des ^{220}Rn .

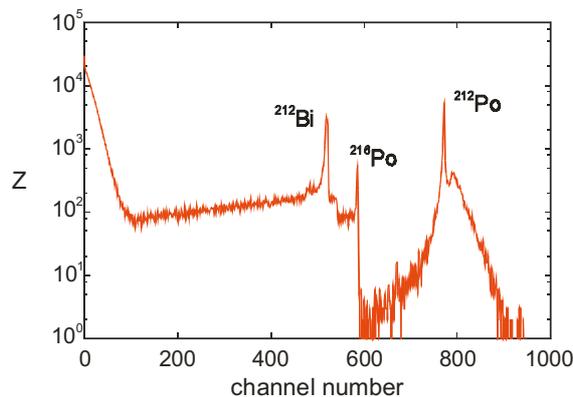


Abbildung 7. Mit einem PIPS-Detektor in der Thoron-Referenzkammer gemessenes Alpha-Spektrum. Die Peaks stammen von den ^{220}Rn -Folgeprodukte die sich auf der Detektor-Oberfläche abscheiden. Das Kontinuum wird durch die im Volumen verteilten Folgeprodukten verursacht. Messzeit = 100000 s.

In Abbildung 8 ist die Verteilung des ^{216}Po in der Thoron-Referenzatmosphäre als Funktion der Position der PIPS-Detektoren in verschiedenen Höhen H der

Referenzkammer dargestellt. Die Exhalationsquelle befindet sich bei der Höhe $H = 0$ (siehe Abb. 1), während die Höhe $H = 65$ cm der Bauhöhe der Referenzkammer entspricht. Eine Abhängigkeit zwischen Z und dem Abstand des PIPS-Detektors von der Mitte der Referenzkammer ist nicht zu beobachten. Die Messungen zeigen, dass die Verteilung des ^{220}Rn bis zu $H = 40$ cm innerhalb der Messunsicherheit homogen ist. Ab $H = 50$ cm ist der Einfluss des Ventilators auf der Abscheidung des ^{216}Po sehr stark. In Spektren die in Höhen kleiner als 10 cm aufgenommen werden, spielen die aus der Quelle direkt strahlende α -Teilchen die größere Rolle.

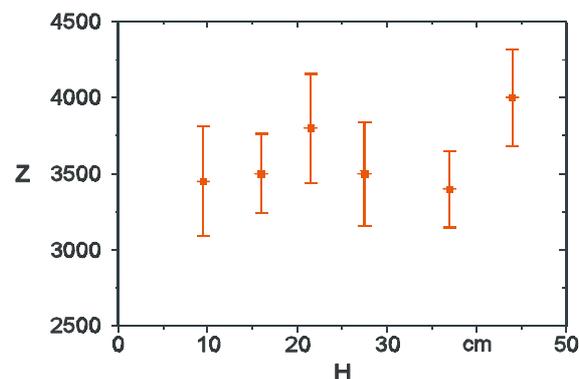


Abbildung 8. Verteilung des ^{216}Po in der Thoron-Referenzatmosphäre. Die Ereignisse im ^{216}Po -Peak (siehe Abb. 7 und Text) in einem Zeitintervall von 100000 s sind hier als Funktion der Höhe in der Thoron-Referenzkammer dargestellt.

4. Zusammenfassung und Ausblick

Eine Thoron-Referenzkammer wurde im Laboratorium „Umweltradioaktivität“ der PTB entwickelt. Stabile und homogene Thoron-Referenzatmosphären zur Kalibrierung von Thoron-Messgeräten werden erzeugt. Aktivitätskonzentrationen in Luft zwischen 1 kBq/m^3 und 10 kBq/m^3 werden mit Hilfe einer Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer charakterisiert. Die Thoron-Referenzatmosphäre ist rückführbar auf das Radonaktivitätsnormal der PTB.

Die Referenzfelder sind an die Radonnormal-Kalibriereinrichtung der PTB angeschlossen, und Kalibrierungen von Thoron-Messgeräten mit Standard-Messunsicherheiten unterhalb von 5% können durchgeführt werden.

5. Literatur

[1] M. Doi, S. Kobayashi, Characterization of Japanese wooden houses with enhanced radon and thoron concentrations, Health Phys. 66 (1994) 274-282.

[2] T. Yamasaki, Q. Guo, T. Iida, Distributions of thoron progeny concentrations in dwellings, Rad. Prot. Dosim. 59 (1995) 135-140.

[3] K.K. Dwivedi, R. Mishra, S.P. Tripathy, A. Kulshreshtha, D. Sinha, A. Srivastava, P. Deka, B. Bhattacharjee, T.V. Ramachandran, K.S.V. Nambi, Simultaneous determination of radon, thoron and their progeny in dwellings, Radiat. Meas. 33 (2001) 7-11.

[4] UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation), Sources and effects of ionizing radiation. UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with annexes, United Nations Sales Publication, New York.

[5] Y. Li, S.D. Schery, B. Turk, Soil as a source of indoor ^{220}Rn , Health Phys. 62 (1992) 453-457.

[6] L. Mjönes, R. Falk, H. Mellander, L. Nyblom, ^{220}Rn and its progeny in Sweden, Envir. Int. 22 (1996) S1125-S1133.

[7] J. Wiegand, S. Feige, X. Quingling, U. Schreiber, K. Wieditz, C. Wittmann, L. Xiarong, Radon and thoron in cave dwellings (Yan'an, China), Health Phys. 78 (2000) 438-444.

[8] J. Bigu, Design and operation of an automated beta-particle counting system for the measurement of ^{220}Rn (and ^{222}Rn) progeny, Appl. Radiat. Isot. 43 (1992) 443-448.

[9] R. Falk, H. Möre, L. Nyblom, Measuring techniques for environmental levels of radon-220 in air using flow-through Lucas cell and multiple time analysis of recorded pulse events, Appl. Radiat. Isot. 43 (1992) 111-118.

[10] J. Bigu, J. Elliott, An instrument for continuous measurement of ^{220}Rn (and ^{222}Rn) using delayed coincidences between ^{220}Rn and ^{216}Po , Nucl. Instr. and Meth. A 344 (1994) 415-425.

[11] E.O. Knutson, A.C. George, P. Shebell, C.V. Gogolak, EML thoron gas measurements, Radiat. Prot. Dosim. 56 (1994) 263-266.

[12] A.R. Hutter, A method for determining soil gas ^{220}Rn (thoron) concentrations, Health Phys. 68 (1995) 835-839.

[13] A. George, State-of-the-art instruments for measuring radon/thoron and their progeny in dwellings - a review, Health Phys. 70 (1996) 451-463.

[14] P.T. Wasiolek, S.D. Schery, J.E. Broestl, A.C. James, Experimental and modeling studies of ^{220}Rn decay products in outdoor air near the ground surface, Envir. Int. 22 (1996) S193-S204.

[15] C. Nuccetelli, F. Bochicchio, The thoron issue: monitoring activities, measuring techniques and dose conversion factors, Rad. Prot. Dosim. 78 (1998) 59-64.

[16] K.N. Yu, Z.J. Guan, E.C.M. Young, M.J. Stokes, Active measurements of indoor concentrations of radon and thoron gas using charcoal canisters, Appl. Radiat. Isot. 49 (1998) 1691-1694.

[17] J. Bigu, Metrology and monitoring of thoron (^{220}Rn), Division Report MRL 93-037 (TR) (1992) CANMET, Energy, Mines and Resources, Canada.

[18] H. Möre, R. Falk, L. Nyblom, A bench-top calibration chamber for ^{220}Rn activity in air, Envir. Int. 22 (1996) S1147-S1153.

- [19] G. Butterweck, C. Schuler, A. Paul, A. Honig, R. Dersch, V. Schmidt, P. Hamel, H. Buchröder, A. Rox, W. Herzog, Intercomparison exercise of the PTB, BfS, MPA and PSI calibration facilities for radon gas concentration, *Rad. Prot. Dosim.* 98 (2002) 219-222.
- [20] Y.F. Su, G.J. Newton, Y.S. Cheng, H.C. Yeh, Experimental measurements of the diffusion coefficient of ^{212}Pb , *Health Phys.* 56 (1989) 309-314.
- [21] International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 50, Ann. ICRP No. 17 (1987).
- [22] G. Kromphorn, Bestimmung der Aktivität der Thoriumisotope ^{228}Th , ^{230}Th und ^{232}Th in thoriumhaltigen Materialien mittels Alphaspektrometrie, PTB-Bericht PTB-Ra-36 (1995), Physikalisch-Technische Bundesanstalt.
- [23] J.B. Hirsch, A.I. Lovaas, Preparation of a dry ^{228}Th source of thoron, *J. Inorg. Nucl. Chem.* 29 (1967) 599-600.
- [24] E. Gargioni, A. Honig, A. Röttger, A new calibration facility for thoron gas activity concentrations, Seventh International Symposium on Natural Radiation Environment (2002), Rhodes, Greece.
- [25] Gammadata Mätternik AB, User's guide for the ATMOS 12 dpx (1996), Gammadata.
- [26] S. Röttger, A. Paul, A. Honig, U. Keyser, On-line low- and medium-level measurements of the radon activity concentration, *Nucl. Instr. and Meth. A* 466 (2000) 475-481.
- [27] A. Paul, A. Honig, D. Forkel-Wirth, A. Mueller, A. Marcos, Traceable measurements of the activity concentration in air, *Nucl. Phys. A* 701 (2002) 334c-342c.
- [28] Nuclear Data, Decay Radiation. National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory Upton, NY, USA (1998).
- [29] R. Dersch, U. Schötzig, Production and measurement of ^{222}Rn standards, *Appl. Radiat. Isot.* vol. 49 (1998) 1171-74.
- [30] A. Paul, A. Honig, S. Röttger, U. Keyser, Measurement of radon and radon progenies at the German radon reference chamber, *Appl. Radiat. Isot.* 52 (2000) 369-75.
- [31] A. Paul, A. Honig, S. Röttger, U. Keyser, Metrology of the activity concentration of radon and its progenies at the German radon reference chamber, International Congress Series 1225 (2002) 161-167.