



Bundesministerium  
für Umwelt, Naturschutz  
und Reaktorsicherheit

# SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

**THORON KALIBRIERUNG DER RADON/THORON-MONITORE  
UND DER EINFLUSS AUF KERNSPUR-RADONDOSIMETER**

**BMU - 2004-648**



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

**BMU – 2004-648**

**„Thoron Kalibrierung der Radon/Thoron-Monitore  
und der Einfluss auf Kernspur-Radondosimeter“**

**Institut für Physikalische Chemie**

**Isotopenlabor**

**Universität Göttingen**

**Tammannstraße 6**

**37077 Göttingen**

Durchführung: Dr. Rainer Rolle

Projektleitung: Prof. G. Eckold

## **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.

Dieser Bericht wurde durch das Institut für Physikalische Chemie der Universität Göttingen, Tammannstraße 6, 37077 Göttingen, erstellt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der 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: 2004



## 1. Aufgabenstellung

Die Hauptkomponente der Exposition des Menschen mit ionisierender Strahlung ist natürlichen Ursprungs und entsteht im wesentlichen durch die Inhalation von kurzlebigen Zerfallsprodukten des radioaktiven Edelgases Radon (Rn), das in Form der Nuklide Rn-222 und Rn-220 (Thoron) auftritt. Infolge der größeren Halbwertszeit ist Rn-222 meist in sehr viel höheren Konzentrationen in der Luft vorhanden als Rn-220. Rn-222 und dessen kurzlebige Zerfallsprodukte sind deshalb im allgemeinen von größerer Relevanz für den Strahlenschutz. Strahlenschutzmaßnahmen sowohl im Arbeits- als auch im Wohnbereich werden im allgemeinen auf der Grundlage von Messungen durchgeführt, die die konkrete Gefährdungssituation charakterisieren sollten. Dazu werden Messungen der Aktivitätskonzentration von Rn-222 oder dessen kurzlebiger Zerfallsprodukte in der Luft durchgeführt. Aus verschiedenen Gründen wird die Strahlenschutzsituation oft auf der Grundlage ausschließlich von Rn-222-Messungen und mit Annahme eines Gleichgewichtsfaktors von 0,4 eingeschätzt. Wenn jedoch Rn-220 in nennenswerten Aktivitätskonzentrationen in der Messluft vorhanden ist und die Messgeräte auch Rn-220 nachweisen, so können Fehlinterpretationen zur Strahlenschutzsituation auftreten, da Rn-220-Zerfallsprodukte, die die eigentliche Strahlenexposition verursachen, nicht zeitlich und räumlich mit der Rn-220-Gas Konzentration korreliert sind. Deshalb ist die Kenntnis der Querempfindlichkeit von handelsüblichen, für den praktischen Strahlenschutz gebräuchlichen Messgeräten gegenüber Rn-220 notwendig, um die Aussagekraft der Messungen einschätzen zu können.

## 2. Untersuchungsschwerpunkte

Zum Erreichen der in der Aufgabenstellung genannten Ziele waren folgende Schritte erforderlich:

- Untersuchungen zur Herstellung definierter Thoron-Referenzatmosphären.
  - Untersuchung des Emanationsgrades der Thoron-Exhalationsquelle
  - Untersuchung der Konstanz der verwendeten Quelle
  - Monitoring zur Überwachung der Thoronkonzentration in der Referenzatmosphäre
- Untersuchungen an integrierenden Messsystemen auf der Basis von Festkörperspurdetektoren  
Dazu sollten die Messergebnisse bei Exposition in einer reinen Thoronatmosphäre, einer Radon-Thoron-Mischatmosphäre und einer reinen Radonatmosphäre verglichen werden.
- Untersuchungen an aktiven, zeitauflösenden Messgeräten  
In diese Untersuchungen sollten die hauptsächlich in kommerziellen Messgeräten angewendeten Detektionsprinzipien
  - Elektrostatische Anreicherung von Po-218 auf Halbleiterdetektoren
  - Gitterionisationskammern mit spektrometrischer Auswertung
  - Ionisationskammern ohne spektrometrische Auswertung einbezogen werden.

Zur Untersuchung der für die Herstellung der Referenzatmosphären notwendigen Radon- und Thoronquellen wurde ein System auf Basis gekühlter Aktivkohle entwickelt, das eine genaue Bestimmung von Radon und Thoron aus der Luft erlaubt. Mit Hilfe dieses Systems wurden zwei Durchflussquellen (Rn-222 und Rn-220) auf ihren Emanationsgrad hin und ihr Verhalten bei kontinuierlichem Einsatz untersucht. Mit diesen Quellen wurde ein

Überwachungsgerät kalibriert, mit dem die Konzentrationen über einen längeren Zeitraum erfasst werden konnten.

In die Konzentrationen, die auf diese Weise hergestellt und überwacht werden konnten, wurden die kommerziellen Messsysteme eingebracht und überprüft.

### 3. Zerfallscharakteristiken

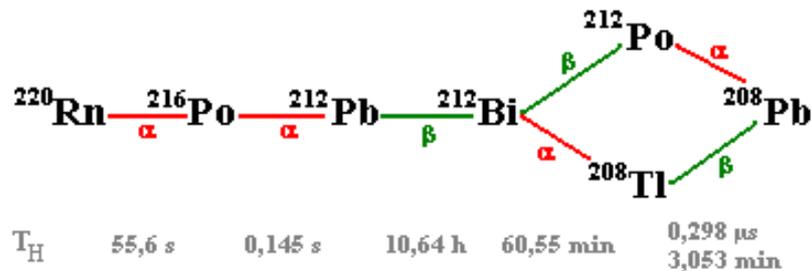


Abbildung 1: Zerfallsreihe des Rn-220

Das Rn-220 zerfällt unter  $\alpha$ -Emission mit einer Halbwertszeit von 55,6 s in das Po-216, das seinerseits über einen  $\alpha$ -Zerfall in das Pb-212 übergeht. Dieser Zerfall hat eine Halbwertszeit von 0,145 s, weshalb das Po-216 im radioaktiven Gleichgewicht mit dem Rn-220 angenommen werden kann. Mit einer Halbwertszeit von 10,64 h bildet das Pb-212 über einen  $\beta$ -Zerfall das Bi-212, welches bei einer Halbwertszeit von 60,55 min zwei Zerfallskanäle besitzt. Mit einer Wahrscheinlichkeit von 35,94 % findet ein  $\alpha$ -Zerfall zum Tl-208, mit 64,06 % findet ein  $\beta$ -Zerfall zum Po-212 statt. Das Po-212 geht unter  $\alpha$ -Emission mit einer Halbwertszeit von 0,298  $\mu$ s in das stabile Pb-208 über. Auf Grund der kürzeren Halbwertszeit befindet sich das Po-212 im radioaktiven Gleichgewicht mit dem Bi-212, so dass über die Messung des  $\alpha$ -Zerfalls des Po-212 auch die  $\alpha$ -Zerfälle des Bi-212 angegeben werden können. Das Tl-208 zerfällt mit einer Halbwertszeit von 3,053 min über einen  $\beta$ -Zerfall ebenfalls in das stabile Pb-208.

In der folgenden Tabelle sind die Energien der  $\alpha$ -Zerfälle aus der Rn-220 Zerfallsreihe mit den Zerfällen aus der Rn-222 Zerfallsreihe aufgeführt. Hier ist zu erkennen, dass die Linien des Po-218 und des Bi-212 sehr dicht beieinander liegen, so dass sie in der Regel nicht aufgelöst werden. Damit wird deutlich, wie die Rn-222 Messung über das Po-218 durch die Anwesenheit der Rn-220 Zerfallsprodukte direkt gestört wird, abgesehen von Tailing-Effekten.

Energie des $\alpha$ -Zerfalls [MeV]	Rn-222 Zerfallsprodukte	Rn-220 Zerfallsprodukte
6,002	Po-218	
6,050		Bi-212
6,089		Bi-212
6,778		Po-216
7,687	Po-214	
8,785		Po-212

Tabelle 1: Gegenüberstellung der Zerfallsenergien der  $\alpha$ -Zerfälle in den Zerfallsreihen des Rn-220 und Rn-222

## 4. Herstellung einer definierten Aktivitätskonzentration

### 4.1 Aufbau des Aktivkohlefilters

#### 4.1.1 Messprinzip

Die vorgekühlte Messluft wird durch ein Aktivkohlebett, welches ebenfalls gekühlt wird, geleitet. Hierdurch wird das Radon und Thoron quantitativ aus dem Luftstrom abgenommen und auf der Aktivkohle konzentriert. Die Aktivkohle wird anschließend homogenisiert und die Zerfallsprodukte des Radon und Thoron über die Gammaskopimetrie bestimmt. Für diesen Zweck wurden Standardproben aus Aktivkohle mit Kalibrierstandardlösungen hergestellt, um Kalibrierkurven für die gegebene Geometrie zu erhalten.

Zur Kontrolle der so ermittelten Kalibration wurde ein  $^{222}\text{Rn}$ -Standard der PTB verwendet und auf die Aktivkohle gebracht. Die gefundenen Aktivitäten stimmten im Rahmen von 3 % sehr gut mit den angegebenen Werten der PTB überein. Hierdurch wurde die Güte der gesamten Prozedur, vom Sammeln des Gases auf der Aktivkohle bis zur Gamma-Spektrometrie, überprüft und bestätigt.

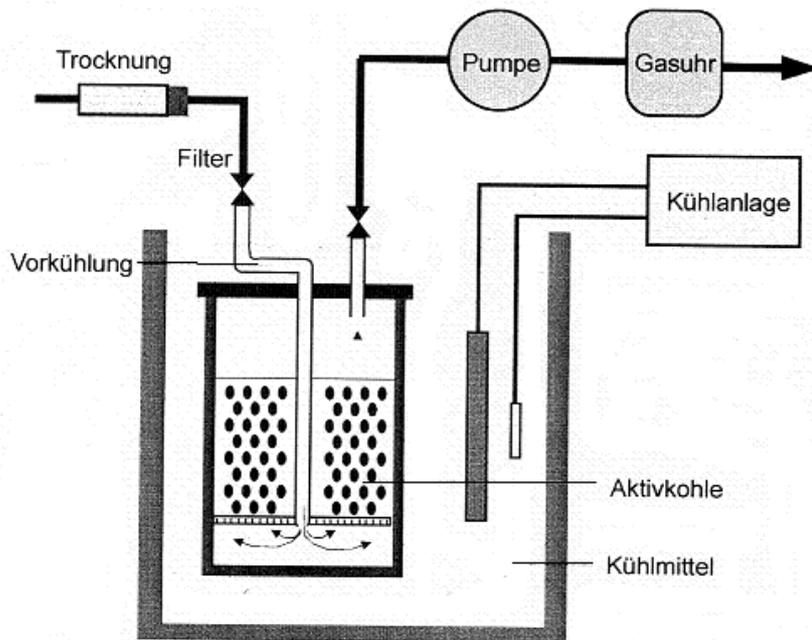


Abbildung 1: Schematischer Aufbau der Aktivkohlefilters

#### 4.1.2 Wirkungsgrad des Aktivkohlefilters

Um niedrige Nachweisgrenzen zu erhalten, sollten mehrere Kubikmeter Luft bei einem Durchfluss von 5 l/min auf der Aktivkohle konzentriert werden. Bei einer Kontaktzeit von ca. 2 Sekunden im unteren Aktivkohlebett wird das Radon aus dem Luftstrom zu mehr als 99 % an der Aktivkohle adsorbieren. Dabei soll die Anordnung eine Standzeit von bis zu 10 Stunden besitzen, so dass ein Luftvolumen von ca. 3 m<sup>3</sup> bei einer relativen Luftfeuchte von 40 % untersucht werden können.

Der zu messende Luftstrom wurde mit  $\text{CaCl}_2$  getrocknet. Eine Verwendung von SilicaGel empfiehlt sich nicht, da hier die Feuchte nur adsorbiert und die Verweilzeit in der Trockenstrecke variabel ist. Dieses Verhalten hat für die Thoronmessung einen entscheidenden Einfluss, der bei der Verwendung von  $\text{CaCl}_2$  nicht vorliegt.

Um die Adsorption des Radons auf der Aktivkohle zu erhöhen, wurde der Luftstrom und die Aktivkohle in einem Bad bei  $-40^\circ\text{C}$  gekühlt. Die Dimensionen des Trockners und Kühlers wurden für den Luftstrom und das maximal zu messende Volumen optimiert, um die Zerfallszeit vom Ansaugpunkt des Luftstroms bis zur Aktivkohle klein zu halten. Dieses ist für die Messung des Thoron ( $t_{1/2} = 55,6 \text{ s}$ ) notwendig.

#### 4.1.3 Überprüfung des Aktivkohlefilters auf Radonverluste

Um eine genaue Bestimmung des Radon über die Gamma-Spektrometrie zu gewährleisten, muss überprüft werden, dass das Radon vollständig auf der Kohle adsorbiert wird. Hierzu wurde die Aktivkohle bei unterschiedlichen Temperaturen des Kühlbades mit Radon beladen. Diese Proben wurden dann nicht homogenisiert, sondern die Aktivkohle wurde in zwei Schichten entnommen und diese Teilproben gamma-spektrometrisch ausgemessen.

Temperatur des Kühlbades	Anteil der Aktivität in der unteren Schicht
$20^\circ \text{ C}$	40 % - 90 %
$0^\circ \text{ C}$	80 % - 98 %
$-40^\circ \text{ C}$	> 99,5 %

Tabelle 2: Aufstellung des Aktivitätsanteils der unteren Aktivkohleschicht in Abhängigkeit der Temperatur

Bei einer Temperatur von  $-40^\circ \text{ C}$  (ca.  $20^\circ \text{ C}$  über dem Siedepunkt des Radon) wird das Radon demnach praktisch vollständig in der Aktivkohle aufgenommen.

Zur weiteren Überprüfung wurde das Trockenmittel, welches sich vor der Aktivkohle befindet, und das Kondenswasser bzw. -eis, welches im Vorkühler entstehen kann, untersucht. Diese Ergebnisse wurden mit der Aktivität auf der Aktivkohle verglichen. Dabei wurde festgestellt, dass die gemessene Aktivität jeweils kleiner als 1 % und 0,1 % der Aktivität der Aktivkohle war. Damit sind diese Verluste vernachlässigbar klein.

Als letzte Möglichkeit des Radonverlustes wurde die gamma-spektrometrische Messung angesehen, da hierbei der Messbehälter aufgewärmt wird und sich eventuell etwas Radon wieder von der Kohle lösen kann. Relative Aktivitätsmessungen mit noch kaltem und aufgewärmten Messbehälter zeigten allerdings keine Aktivitätsverluste. Zusätzlich wurde eine Langzeitmessung über die Dauer von 4 Tagen ausgeführt, die zeigte, dass die Aktivität auf der Aktivkohle die Halbwertszeit des Radon-222 aufweist. Auch dieses ist auch ein Indiz dafür, dass kein signifikanter Verlust an Radon entsteht.

## 4.2 Untersuchung von Durchfluss-Kalibrierquellen

### 4.2.1 Bestimmung des Emanationsgrades $\varepsilon$

In einem ersten Teilschritt sollte der Emanationsgrad des Quellenmaterials bestimmt werden. Der Radon-Emanationsgrad einer Quelle lautet

$$\varepsilon = \frac{\text{Rn (verfügbar)}}{\text{Rn (verfügbar)} + \text{Rn (nicht verfügbar)}}$$

Für die Bestimmung des Emanationsgrades einer Quelle benötigt man keine absolute Kalibrierung der Anordnung. Unter der Voraussetzung, dass die Geometrie immer die gleiche bleibt, können relative Gamma-Messungen an der Quelle, die einmal belüftet und einmal geschlossen ist, zur Bestimmung durchgeführt werden.

Die Quellen sollten jeweils lang genug geschlossen sein oder lange genug im Durchflussbetrieb laufen, um den Zustand des radioaktiven Gleichgewichts von Radon und seinen Folgeprodukten zum emanierenden Radium bzw. Thorium zu erreichen. Es können aber auch Aufbau- und Abfallkurven aufgenommen werden, was lediglich einen höheren Rechenaufwand bedeutet.

Quelle (Hersteller Pylon)	Emanation (Firmenangabe) bei $-20^{\circ}\text{C}$ bis $40^{\circ}\text{C}$ und allen Feuchtegraden	Emanationsgrad $\varepsilon$
Radon-Durchfluss	100 %	1: 40,0 % 2: 41,9 % 3: <u>37,2 %</u> 39,7 % $\pm$ 2,4 %
Thoron-Durchfluss	100 %	1: 13,9 % 2: 18,9 % 3: 21,8 % 4: 17,3 % 5: 15,4 % 6: 14,9 % 7: 16,3 % 8: 17,9 % 9: <u>21,3 %</u> 17,5 % $\pm$ 2,7 %

Tabelle 3: Emanationsgrad der untersuchten Radon- und Thoron-Durchflussquellen

In der Tabelle 3 sind die Einzelwerte und die Mittelwerte aufgeführt. Es ist zu erkennen, dass die gemessenen Emanationen erheblich von den Herstellerangaben abweichen. Die gefundenen Werte von 39,7 % für Radon und 17,5 % für Thoron stehen im Widerspruch zur der Herstellerangabe, dass das Quellenmaterial „... is in a form which emanates 100 % of the gas produced“.

#### 4.2.2 Messung der verfügbaren Thoron- und Radonmenge

Die kontinuierlich verfügbaren Mengen an Thoron und Radon der Quellen wurden mit dem Aktivkohlesystem in mehreren Messdurchläufen untersucht. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 4 aufgeführt.

Quelle (Pylon)	Aktivität (Firmenangabe) zum Messdatum in kBq	Kontinuierliches Rn verfügbar: (Firmenangabe) in Atome / s	Gemessenes verfügbares Rn in Atome / s
Radon-Durchfluss Rn-1025	$^{226}\text{Ra}$ : $20,3 \pm 4 \%$	$^{222}\text{Rn}$ : 20300	1: 19500 2: <u>19800</u> 19650
Thoron-Durchfluss Th-1025	$^{224}\text{Ra}$ : $12,63 \pm 8 \%$ ( $^{228}\text{Th}$ )	$^{220}\text{Rn}$ : 12630	1: 3406 2: 738 3: 1902 4: <u>1867</u> 1978

Tabelle 4: Kontinuierlich verfügbares Radon und Thoron der Quellen

Für die  $^{222}\text{Rn}$ -Quelle stimmt das gemessene verfügbare Radon mit der Firmenangabe annähernd überein. Da die angegebene  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität identisch ist mit der angegebenen und gemessenen verfügbaren  $^{222}\text{Rn}$ -Menge, könnte sich die Herstellerangabe auf die zur Emanation zur Verfügung stehende  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität beziehen. Also nur auf den Anteil  $\varepsilon$  der Aktivität. Damit wäre die gesamte  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität der Rn-1025 Quelle um den gemessenen Faktor  $1/\varepsilon$  größer, also  $20,3 \text{ kBq} / 0,4 = 50,8 \text{ kBq } ^{226}\text{Ra}$ .

Für die  $^{220}\text{Rn}$ -Quelle wurden unterschiedliche Werte an verfügbarem  $^{220}\text{Rn}$  gefunden, je nach Feuchte- und Durchflussbedingungen. Die Messungen ergeben einen Mittelwert von 1978 Atomen/s. Nimmt man den vom Hersteller angegebenen Wert von 12,63 kBq für die ( $^{228}\text{Th} /$ )  $^{224}\text{Ra}$ -Aktivität als Gesamtaktivität an und multipliziert diese mit dem ermittelten Emanationsgrad  $\varepsilon = 0,175$ , so ergibt sich eine verfügbare Thoronmenge von  $12630 \text{ Atome/s} \cdot 0,175 = 2210 \text{ Atome/s}$ . Dieser Wert liegt im Bereich der gemessenen Werte.

#### 4.2.3 Feuchteabhängigkeit der Durchflussquellen

Zur Kontrolle der Händlerangabe, dass die Quellen bei allen Feuchten die gleiche Emanation besitzen, wurden die Quellen einmal mit Raumluft (41 % Luftfeuchte, bei 26°C) und einmal mit Silica-getrockneter Luft (ca. 3 % Luftfeuchte) durchspült und die jeweilige Konzentration an Radon bzw. Thoron mit dem in 3.3 beschriebenen Monitor gemessen. Hierbei wurde festgestellt, dass die Quellen bei Raumfeuchte weniger emanieren als bei getrockneter Luft.

### 4.3 Überwachung des Konzentrationsverlaufes

Um eine Möglichkeit der Überwachung des Konzentrationsverlaufes während einer Untersuchung zu haben, wurde ein Monitor, basierend auf der elektrostatischen Abscheidung mit den Durchflussquellen für verschiedene Bedingungen kalibriert.

Der Monitor erlaubt durch die Auswertung des Impuls-Höhenspektrums die gleichzeitige Bestimmung von  $^{222}\text{Rn}$  und  $^{220}\text{Rn}$ , da die Fenster für die Peaks Po-218, Po-216, Po-214 und Po-212 nicht überlagern. Eine mögliche langfristige Kontamination des Detektors mit Po-210 stellt auch kein Problem dar, da die Trennung des Po-218-Fensters zum Po-210-Peak möglich ist.

Die Kalibrationswerte des Monitors sind in der Tabelle 5 aufgeführt. Für das Radon wurden Werte für das Po-218 und das Po-214-Signal bestimmt. Für das Thoron wurde der Po-216-Peak verwendet. Hierbei wurde immer ein kleines Trockenrohr vor dem Monitor mitverwendet. Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Monitors liegt für getrocknete Luft höher und das Trockenvolumen von 78 ml behindert das Radon praktisch nicht und ist für eine Thoronmessung noch akzeptabel.

	über Folgeprodukt	Ansprechwahrscheinlichkeit [cps/(Bq/m <sup>3</sup> )]
Rn-222	Po-218	3,44(3)
	Po-214	3,60(2)
Rn-220	Po-216	$2,3(1)\cdot 10^{-4}$

Tabelle 5: Kalibrationsfaktoren für elektrostatischen Monitor mit vorgeschalteter Trocknung (CaCl<sub>2</sub>)

## **5 Untersuchungen an den verschiedenen automatischen Messsystemen**

### 5.1 Allgemeines

Die handelsüblichen Radonmonitore basieren alle auf der Grundlage der Erfassung von Alphastrahlung der kurzlebigen Zerfallsprodukte. In der Zerfallskette des Thoron treten ähnlich der Radonzerfallskette weitere Alphastrahler auf (siehe Punkt Zerfallscharakteristik), die je nach Energiebereich, der für die Auswertung der Messungen herangezogen wird, zum Messeffekt beitragen können. Unterschiede zur Radonmessung ergeben sich insbesondere infolge dieser unterschiedlichen Alphaenergien und der unterschiedlichen Zerfallskonstanten der Nuklide.

Zur Messung kann das Messgas durch die Messkammer gepumpt oder infolge Diffusion ein Konzentrationsausgleich mit der Messluft in der Umgebung hergestellt werden. Beide Varianten werden bei kommerziellen Messgeräten angewendet.

Dabei kann sich in der Messkammer, bedingt durch die geringe Thoron-HWZ bei Diffusion und Durchflussbetrieb, eine gegenüber der Konzentration der Messluft geringere Tn-Aktivitätskonzentration einstellen. Beim Durchflussbetrieb hängt das Verhältnis zwischen dem Gleichgewichtswert der Aktivitätskonzentration in der Messkammer ( $C$ ) und der Aktivitätskonzentration der Messluft ( $C_0$ ) vom Luftdurchsatz und vom Messkammervolumen ab. Beim Durchströmen der Messkammer kommt es dabei zu Inhomogenitäten, die zu einer Verringerung der Nachweiseffektivität führen. Der Wert dieses Einflusses ist prinzipiell nur

experimentell zu ermitteln, da die durch die Messkammergeometrie bestimmte Gasverteilung im allgemeinen nicht bekannt ist.

Bei Geräten mit Diffusionsbetrieb erreicht nur ein durch die Diffusionszeitkonstante des Eintrittsfilters gegebener Teil der Thoronaktivität der Messluft das aktive Messkammervolumen. In diesem Fall kann das Verhältnis  $C/C_0$  aus

$$\frac{C}{C_0} = \frac{\lambda_D}{\lambda_D + \lambda_{Th}} \cdot (1 - e^{-(\lambda_{Th} + \lambda_D)t})$$

berechnet werden.

Für ein Glasfaserfilter und ein Messkammervolumen von 250 ml ergibt sich z.B. ein Wert  $\lambda_D = 6 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . Im Gleichgewicht ergibt sich dann:

$$C/C_0 = 0,32.$$

## 5.2 Experimentelle Durchführung

Für die Untersuchungen werden die Messgeräte in einer Tn und einer RnTn-Mischatmosphäre exponiert. Dazu wurde ein Behälter ca. 170 h über die Durchflussquelle mit Thoron und nach 130 h zusätzlich über eine Rn-Durchflussquelle beaufschlagt. Die Radonkonzentration lag dabei ca. um den Faktor 10 höher als die Thoronkonzentration, fiel nach der Beaufschlagung durch nicht zu vermeidende Undichtheiten im externen Messgerätekreislauf jedoch ab. Demgegenüber haben diese Undichtheiten wegen der geringen Halbwertszeit des Thoron keinen Einfluss auf die Thoronkonzentration. Innerhalb des Behälters wurde mittels eines Ventilators eine vollständige Homogenisierung erreicht.

Es wurden

- 3 Messgeräte mit elektrostatischer Anreicherung (Typen ERS 2; RTM 2000; DOSEman)
- 1 Gerät mit Gitterionisationskammer (Typ ATMOS) sowie
- 2 Geräte mit Eindrahtionisationskammer (Typ Alphaguard)

untersucht. Alle Geräte mit Ausnahme eines Gerätes vom Typ Alphaguard arbeiteten im Durchflussbetrieb. Das Gerät mit Diffusionsbetrieb vom Typ Alphaguard wurde im Behälter deponiert. Alle anderen Geräte waren über einen externen Luftkreislauf an den Behälter angeschlossen.

Die Abbildung 2 zeigt den Verlauf der Messgeräteanzeigen während der Expositionszeit. Alle Geräte sind mit einer Unsicherheit von ca. 10 % für Radon kalibriert. Die Geräte weisen untereinander große Differenzen bei der Konzentrationsangabe auf, zeigen aber alle eine gute zeitliche Konstanz.

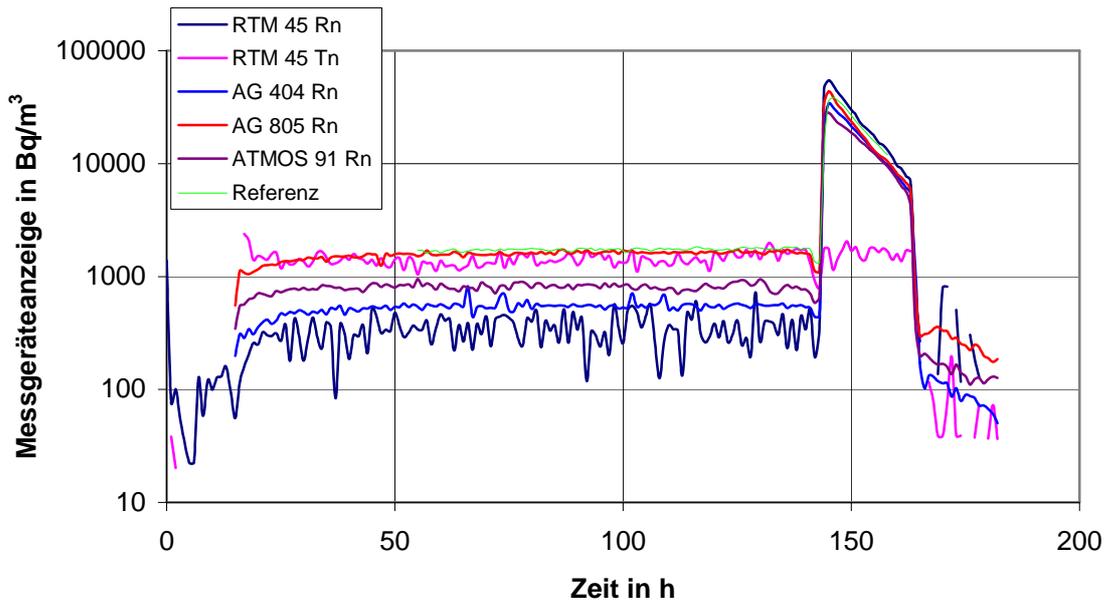


Abbildung 2: Zeitlicher Verlauf der Anzeige der getesteten Geräte während der Expositionszeit

### 5.3 Ergebnisse der Messsysteme

#### *5.3.1 Geräte mit elektrostatischer Anreicherung*

Das Detektionsprinzip bei der Radonmessung besteht darin, dass die infolge radioaktiven Zerfalls von Radon entstehenden positiv geladenen Po-218-Ionen in einem elektrischen Feld auf der aktiven Oberfläche eines HL-Detektors abgeschieden werden und die Alphastrahlung dieses Nuklids sowie des weiteren in der Radonzerfallskette auftretenden Nuklids mit Alphazerfall Po-214 von dem Detektor registriert wird. Der Abscheidvorgang wird von der Feldstärke und der Neutralisationsrate beeinflusst, die das effektive Volumen aus dem die Po-218-Ionen auf dem Detektor abgeschieden werden und damit den Kalibrierfaktor bestimmen. Diese Abhängigkeit führt zu einer Beeinflussung des Messwertes von der Luftfeuchtigkeit, von der Luftionisation, die wiederum von der Aktivität in der Messkammer abhängt sowie von Spurengasen in der Luft. Der Aufbau der Messkammer bestimmt den Einfluss dieser Faktoren auf die Messeffektivität. Verschiedene Messgeräte besitzen Korrekturprozeduren für die Luftfeuchtigkeit. Diese Einflüsse werden hier nicht weiter untersucht. Die Kalibrierung erfolgte bei den gleichen Bedingungen, wie sie auch für diese Untersuchung angewendet wurden. Der Messwert für die Radonanzeige wird entweder aus den im Po-218-Teil des Spektrums (sog. „fast-mode“) oder aus den im gesamten Spektralbereich (sog. „slow-mode“) gemessenen Impulszahlen abgeleitet.

Beim Vorhandensein von Thoron in der Messluft entstehen positiv geladene Po-216-Ionen. Diese werden in dem elektrischen Feld ebenfalls auf der Oberfläche des HL-Detektors abgeschieden und erzeugen einen Messeffekt infolge Alphazerfalls. Von den nachfolgenden Nukliden der Zerfallskette emittieren Bi-212 und Po-212 ebenfalls Alphastrahlung und können die Messung je nach spektralem Auswertebereich beeinflussen. Die Energie der Alphateilchen des Po-216 liegt bei ca. 6,778 MeV und damit zwischen den Energiepeaks der Radonzerfallskette (Po-218 6,002 MeV und Po-214 7,687 MeV). Der zeitliche Verlauf des Aufbaus der Bi-212 und Po-212 – Peaks wird im wesentlichen durch die HWZ des Pb-212 von 10,8 h bestimmt. Dadurch bauen sich diese Nuklide langsamer auf dem Detektor auf als

das Po-214 aus der Radonzerfallskette. Die Abbildung 3 zeigt ein Spektrum, das beim gleichzeitigen Auftreten von Radon und Thoron in der Messluft entsteht. Daraus ist ersichtlich, dass die Empfindlichkeit des Messgerätes für Thoron von den eingestellten ROI's des Messgerätes abhängt.

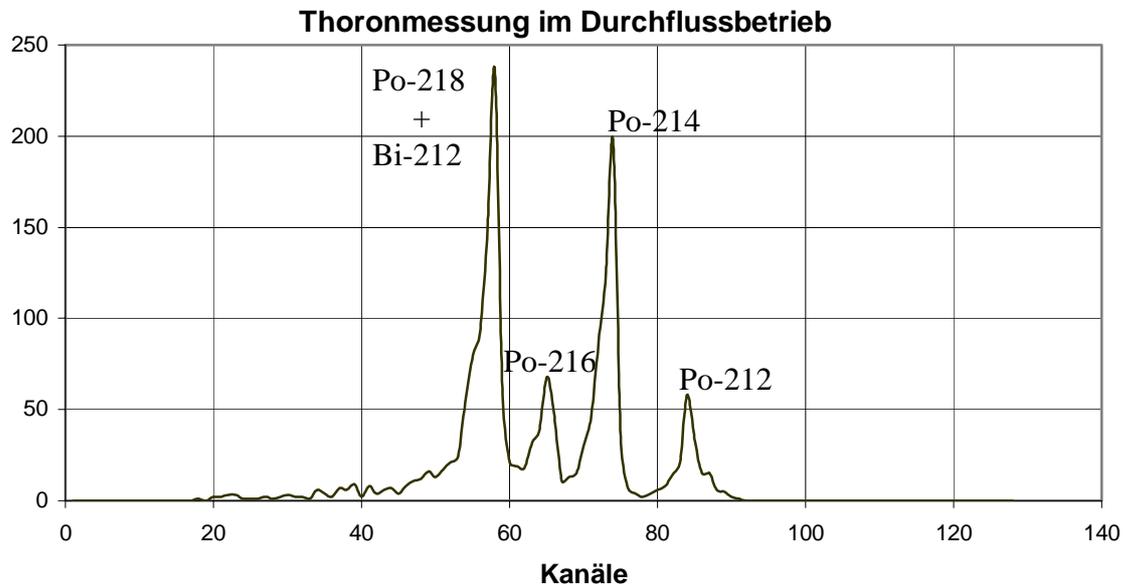


Abbildung 3:  $\alpha$ -Spektrum der Rn-220- und Rn-222-Folgeprodukte

Ein weiterer Faktor, der die Nachweiseffektivität eines derartigen Messgerätes für Thoron beeinflusst, ist die geringe HWZ des Po-216 von 0,145 s. Diese verursacht neben den oben beschriebenen Eingangsverlusten eine weitere Verringerung der Nachweiseffektivität durch Zerfall im effektiven Volumen, aus dem Po-Ionen auf den Detektor gelangen können.

Folgendes Beispiel zeigt den Einfluss dieses Effektes:

Die mittlere Entfernung, aus der Po-Ionen die Oberfläche des Detektors erreichen können betrage 5 cm. Die Geschwindigkeit  $v$  der Ionen ergibt sich mit der Beweglichkeit  $B$  aus  $v = B \cdot E$  ( $E$ :Feldstärke).  $B$  ist bei Raumbedingungen  $B = D/k \cdot T = 5,7 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ . Bei einer Feldstärke von 100V/cm ist  $v = 114 \text{ cm/s}$ . Daraus wiederum ergibt sich die Zeit  $t = s/v = 0,04 \text{ s}$ . Die HWZ von Po-216 beträgt 0,146 s.

Der Verlust durch Zerfall wäre dann  $C/C_0 = e^{-\lambda \cdot t} \rightarrow C/C_0 = 0,83$ .

Bei Geräten mit Auswertung des Po-218-Bereiches für die Radonanzeige ergibt sich der Einfluss von Thoron aus den in der Messluft gebildeten Anteil von Bi-212 auf dem Detektor. Dieser setzt sich zusammen aus dem Anteil Thoron, der für die Messung wirksam wird (Eingangsverlust, Zerfall im effektiven Volumen)  $a_{\text{Eing}}$  und dem vom primär auf dem Detektor abgeschiedenen Po-216 gebildetem Anteil von Bi-212, der Alphastrahlung emittiert  $a_{\text{Sp}}$ . Aus der Zerfallcharakteristik ergibt sich dieser Anteil zu  $a_{\text{Sp}} = 0,35$ . Anhand der aus dem Spektrum zu ermittelnden Impulszahlen im Po-212-Bereich ist dieser Anteil zu ermitteln. Aus der Zerfallscharakteristik ergibt sich die Bi-212-Impulszahl aus der Po-212-Impulszahl durch Multiplikation mit einem Faktor von  $a_{\text{korr.}} = 0,56$ .

## Ergebnisse

Alle untersuchten Geräte basieren auf einer spektrometrischen Auswertung. 2 Geräte besitzen eine gesonderte Auswertung für Thoron (RTM 2000 und ERS 2). Dabei wird jeweils der Po-216 ROI als Maß für die Thoronkonzentration benutzt. Das personenbezogene Exposimeter DOSEman und das ERS erlauben die Spektrenaussgabe und damit eine quantitative Einschätzung des Thoroneinflusses auf die Radonmessung. Beim Messgerät RTM ist der Einfluss aufgrund des Zeitverlaufes der Anzeige bei Thoron- und Thoron-Radon-Mischatmosphären einzuschätzen.

### *5.3.1.1 Untersuchungen an einem tragbaren Radonmessgerät für die personenbezogene Messung von Radonexpositionen DOSEman*

Der DOSEman ist ein kleines Gerät zur Bestimmung der Radonkonzentration, welches auf dem Prinzip der elektrostatischen Abscheidung beruht. Die Messluft wird nicht aktiv in das Messvolumen gepumpt, sondern passiv über Diffusion der Messkammer zugeführt.

Für die Bestimmung der Kalibrationsfaktoren wurde eine definierte Radonkonzentration in einem Exsiccator verwendet. Die Radonkonzentration wurde mittels der aufgemessenen Pylon Radongas Quelle im Durchflussbetrieb erzeugt. Mit einer Pumpe wurde durch die Quelle und den Exsiccator gesaugt, so dass eine konstante Radonkonzentration zur Verfügung stand, in der der DOSEman für mindestens 3 Stunden belassen wurde. Diese Zeit ist notwendig, da der DOSEman im „Slow Mode“ erst nach 2 Stunden 95 % des wahren Wertes anzeigt.

In der Abbildung 4 sind die Kalibrationswerte für verschiedene Luftfeuchten bei Raumtemperatur aufgetragen. Die Veränderung der Luftfeuchte wurde untersucht, da das Messprinzip des DOSEman die elektrostatische Abscheidung ist, die eine Feuchteabhängigkeit aufweist. Aus diesem Grund wurden Messungen bei 3 %, 28 %, 55 % und 86 % Luftfeuchte durchgeführt. Aus der Abbildung wird deutlich, dass der Kalibrationswert im Rahmen der Fehler im Intervall von 20 % bis 80 % Luftfeuchte für die Praxis im Rahmen eines Fehlers von ca. 8 % als konstant angesehen werden kann. Der Kalibrationswert für getrocknete Luft (3 % Luftfeuchte) sollte nicht verwendet werden, da dieser Zustand in der Praxis im allgemeinen nicht realisiert wird.

Um die Empfindlichkeit des DOSEman gegenüber Thoron zu testen, wurde das Gerät in eine Thoronatmosphäre gebracht, die mit Hilfe der ausgemessenen Pylon Thorongas Quelle erzeugt wurde. In der Abbildung 5 ist das erhaltene Spektrum gezeigt. Es sind die Linien der Thoronfolgeprodukte zu erkennen und das Tailing der Po-216-Linie ist zusätzlich mit eingetragen. Weiterhin sind die voreingestellten ROI für die Radonmessung eingetragen. Hieraus wird deutlich, dass bei Anwesenheit von Thoron die ROI verändert werden müssen. Durch das Bi-212-Signal, das vollständig im Po-218-ROI (ROI 2) liegt, wird die Auswertung der Radonkonzentration verfälscht. Eine Korrektur über das Po-212 wird nicht durchgeführt.

Als Kalibrationswert für eine Thoronmessung über die Po-216-Linie (Kanal 27 – 32) wird  $\eta = 0,04(3) \text{ cts}/_{\text{min}}/(\text{kBq}/_{\text{m}^3})$  bestimmt.

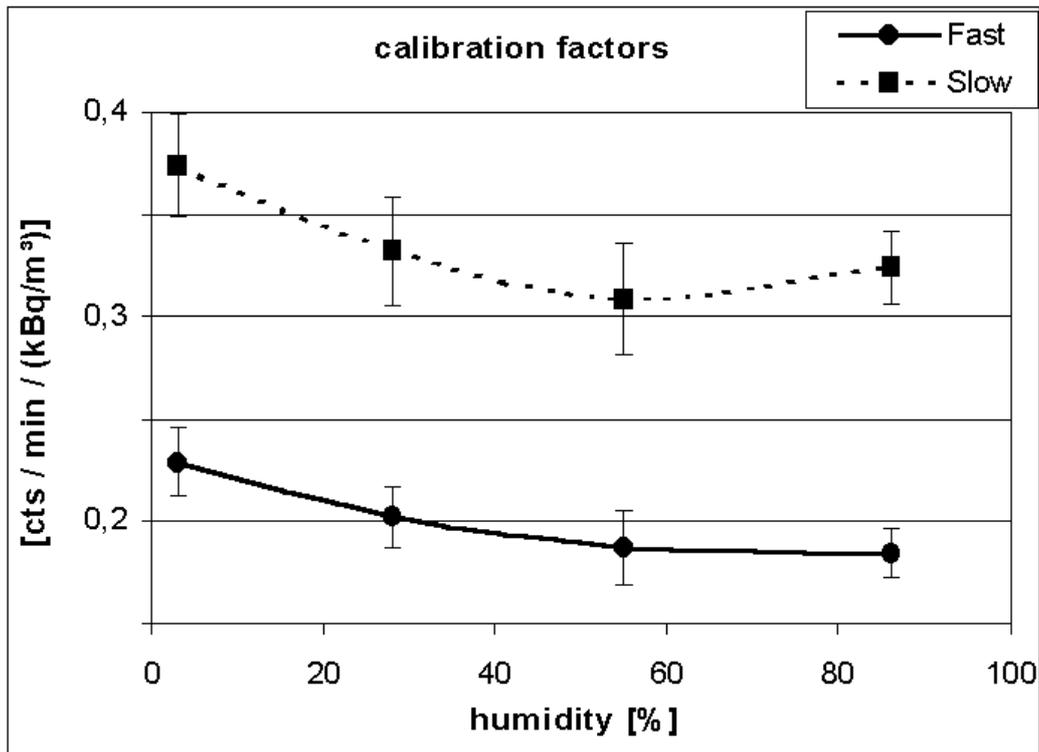


Abbildung 4: Darstellung der Kalibrationsfaktoren des DOSEman für eine Radonmessung für die beiden Betriebsmodi in Abhängigkeit der Luftfeuchte.

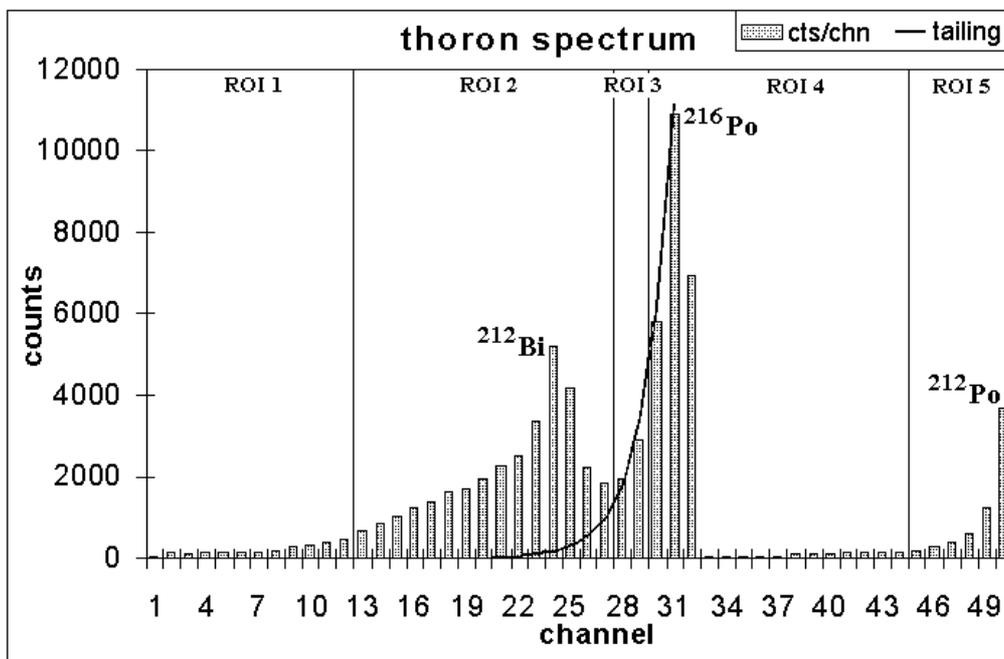


Abbildung 5: Thoronspektrum mit einem DOSEman aufgenommen. Zur Veranschaulichung der Lage des Spektrums sind die ROI der Radonmessung mit eingezeichnet. Weiterhin ist das Tailing der Po-216-Linie aufgetragen.

Um die Diffusion des Radon und Thoron durch die Ledermembran in die Messkammer zu untersuchen, wurde der DOSEman für jeweils 3 Minuten in eine Thoronatmosphäre und eine normale Atmosphäre gebracht. In Messintervallen von einer Minute werden die Po-216 Counts registriert. Diese gespeicherten Werte des ROI sind in der Abbildung 6 kumulativ aufgetragen.

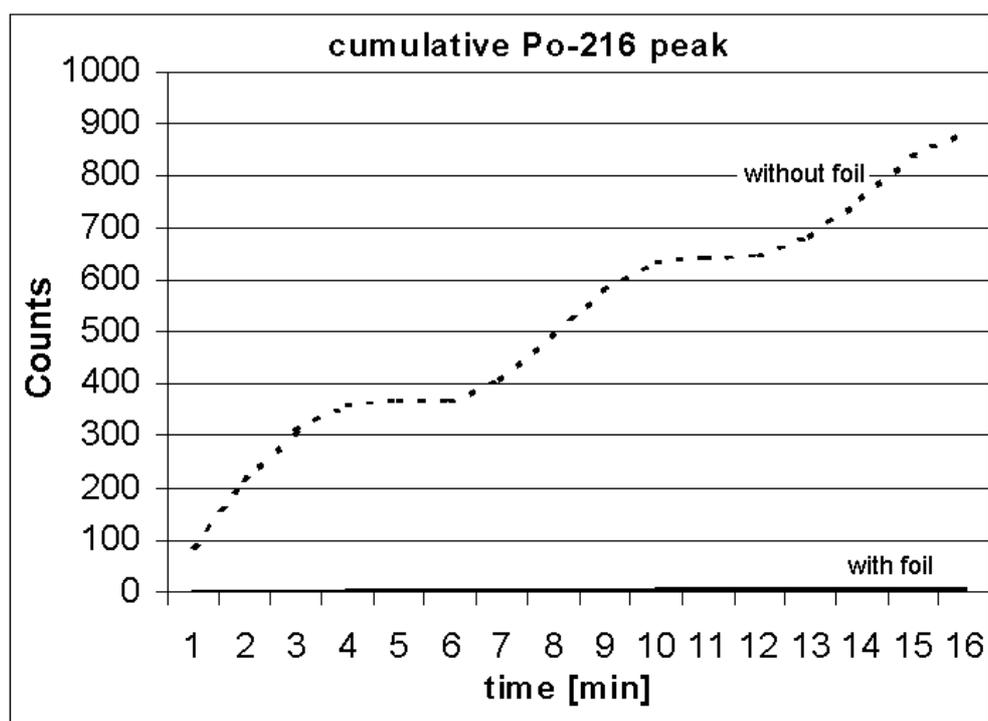


Abbildung 6: kumulative Auftragung der Po-216-Linie. Im Fall ohne Folie ist das Eindiffundieren und das Wegbleiben des Thoron zu den jeweiligen Messzeiten gut zu sehen. Bei der gleichen Messung mit Folie wird deutlich, dass hierdurch das Thoron von der Messkammer fern gehalten wird.

Das Eindringen und das Wegbleiben des Thorongases in der Messkammer kann gut durch das Po-216-Signal gesehen werden. Durch den Anstieg des Signals kann die Diffusionszeit des Thoron durch die Membran auf unter eine Minute abgeschätzt werden. Damit erreicht über 50 % der vorhandenen Thorongaskonzentration die Messkammer.

Um diesen Einfluss auf die Auswertung zu entfernen, bietet der Hersteller eine Folie an, die unter die Ledermembran gelegt wird. Hierdurch soll die Diffusionszeit in die Messkammer so verlängert werden, dass das Thoron auf dem Weg in die Kammer zerfällt. Eine kumulative Auftragung des Po-216-Signals mit der Folie unter den gleichen Bedingungen wie oben ist ebenfalls in der Abbildung 6 aufgenommen. Hier ist die Wirkung der Folie gut zu erkennen. Im Vergleich zur Messanordnung ohne Folie ist kein signifikantes Signal mehr zu erkennen.

Aus diesem Grund sollte der DOSEman immer mit Folie betrieben werden, da auf diese Weise eine korrekte Auswertung der Radongaskonzentration möglich ist. Die Kalibrationsfaktoren für die Radonmessung ändern sich nicht. In der Tabelle 6 sind alle relevanten Daten für verschiedene ROI und Betriebsarten zusammengefasst.

<b>Energie offset</b> <b>Energie / Kanal</b>	3,5(1) MeV 105(7) keV	
	<b>Kalibrationsfaktor</b> [(cts/min)/(kBq/m <sup>3</sup> )] (at 55 % Luftfeuchte, 21°C)	<b>Nachweisgrenze</b> (8h, 20%, 1σ) [Bq / m <sup>3</sup> ]
Fast ( <sup>222</sup> Rn+ <sup>218</sup> Po)	0,19(2)	282(27)
Slow (Fast+ <sup>214</sup> Po)	0,33(3)	170(22)
ROI <sup>214</sup> Po	0,14(2)	389(29)
ROI <sup>216</sup> Po	0,04(2)	1310(78)
Fast ( <sup>222</sup> Rn+ <sup>218</sup> Po) mit zusätzlicher Folie	0,19(2)	282(27)
Slow (Fast+ <sup>214</sup> Po) mit zusätzlicher Folie	0,33(3)	170(22)
<b>Einfluss der Luftfeuchte auf den Kalibrierwert</b> (im Intervall von 20% to 90 % Luftfeuchte)	8 %	

Tabelle 6: Übersicht der Kalibrationsfaktoren und Nachweisgrenzen für verschiedene Betriebsmodi des DOSEman

### 5.3.1.2 Untersuchungen an einem Radon-Thoronmonitor RTM 2000

Die Radon- und Thoronanzeige wird aus den Impulsraten in den Po-218 und den Po-216-ROI's abgeleitet. Das Auftreten von Querempfindlichkeiten zwischen Radon und Thoron bei Mischatmosphären infolge des Übersprechens der entsprechenden Spektrenbereiche wird bei diesem Messgerät durch Korrekturalgorithmen verhindert. Dazu wird das Po-216-Peak (Thoronauswertung) für das Übersprechen aus dem Po-214- Bereich korrigiert. Von den Impulszahlen aus dem Po-218-Bereich, die für die Radonberechnung benutzt werden, wird der Bi-212-Anteil abgezogen. Dieser wiederum wird aus dem Po-212-ROI über das feste Nuklidverhältnis  $N(Bi212)/N(Po212) = 0,56$  bestimmt. Aus dem Zeitverlauf der Anzeige ist zu erkennen, dass der Auswertemodus eine sehr gute Trennung der beiden Komponenten ermöglicht (vergleiche Spektrumbeispiel in Abbildung 3) Die Thoronanzeige des Messgerätes bleibt auch bei Exposition mit 10fach höherer Radonkonzentration konstant. Lediglich die statische Unsicherheit wird infolge der Korrekturen, wie zu erwarten, erhöht.

Das Messgerät kann in den Betriebsarten Durchfluss- und Diffusionsbetrieb betrieben werden. Für die Untersuchungen wurde nur der Durchflussbetrieb benutzt. Die in diesem Messgerät implementierten Korrekturen führen dazu, dass Thoron bei exakt eingestelltem Übersprechfaktor nicht die Radonanzeige beeinflusst.

### 5.3.1.3 Untersuchungen an einem Radon-Thoronmonitor ERS 2

Dieses Messgerät kann in den Betriebsarten Diffusion oder Durchflussbetrieb betrieben werden. Die Untersuchungen zeigten, dass Thoronmessungen in der Betriebsart Diffusion nicht möglich sind. Da der Eingang des untersuchten Gerätes nicht mit einem Filter abgeschlossen war, entstanden durch unterschiedliche Turbulenzen in der Messgeräteumgebung unterschiedliche Austauschprozesse zwischen Messkammer und Messluft, so dass die Thoronanzeige nicht reproduzierbar war. Die weiteren Untersuchungen wurden deshalb ausschließlich in der Betriebsart Durchflussbetrieb mit einem Durchfluss von 3 l/h durchgeführt. Das in der Abbildung 3 gezeigte Spektrum wurde mit diesem Messgerät bei Vorliegen einer Mischatmosphäre aufgenommen.

Die Radonanzeige wird bei diesem Messgerät nur aus den Impulsraten im Po-218 Bereich abgeleitet. Das Gerät besitzt ebenfalls eine Anzeige für Thoron, die aus dem Po-216-Bereich berechnet wird. Für die Geräteanzeigen sind jedoch bei dem untersuchten Gerät keine Korrekturalgorithmen implementiert, so dass hier die oben beschriebenen Beeinflussungen der verschiedenen Spektrenbereiche wirksam werden. Aus dem Spektrum ist, wie oben allgemein beschrieben, ersichtlich, dass der ROI, der für die Thoronanzeige benutzt wird, durch Po-214 beeinflusst wird.

Experimentell wurde ein Wert von  $a = 0,4$  gefunden, was prinzipiell die getroffenen Annahmen bestätigt. D.h., dass der Anteil Po-216-Ionen, der zur Anzeige beiträgt nur ca. 40 % der im Fall von Radon gebildeten Po-218-Ionen beträgt bei gleicher Aktivitätskonzentration in der Messluft. Um den Einfluss des Bi-212 auf die Radonanzeige quantitativ abzuschätzen, muss dieser Anteil noch mit der Emissionshäufigkeit des Bi-212 für Alphastrahlung multipliziert werden. Diese beträgt 0,35. D.h., dass ein Anteil von  $a = 0,4 \cdot 0,35 = 0,14$  des in der Messluft vorhandenen Thorons als Radon angezeigt wird

#### *Quantitative Abschätzung der Querempfindlichkeit*

Der Eintrittsverlust  $C/C_0$  bei diesem Gerät kann durch verschiedene Annahmen bzgl. der Gasverteilung in der Messkammer abgeschätzt werden. Das aktive Volumen, das wie oben beschrieben, durch die Messkammergeometrie, das elektrische Feld sowie die Neutralisationsrate beeinflusst wird, wird durch eine Halbkugel mit einem Radius von ca. 5 cm um den Detektor bestimmt. Wird das Messgas an der dem Detektor gegenüberliegenden Seite der halbkugelartigen Messkammer aufgegeben, so durchströmt es erst den unteren Teil der Messkammer bevor es das aktive Volumen erreicht. Nimmt man eine Kolbenströmung an, so kann eine Aufenthaltszeit von ca. 40 s abgeschätzt werden, bevor es das aktive Volumen erreicht. Daraus ergibt sich ein Eintrittsverlust aus  $C/C_0 = e^{-\lambda \cdot t} = 0,6$ . Berücksichtigt man o.g Verlust durch Zerfall im aktiven Volumen  $C/C_0 = 0,83$  so ergibt sich ein durch radioaktiven Zerfall bedingter Unterschied zur Radonkalibrierung des Messgerätes von  $a = 0,6 \cdot 0,83 = 0,5$ . Der für die Thoronauswertung benutzte Spektrenbereich (Po-216) muss wegen der spektralen Verteilungen etwas enger begrenzt werden als der Bereich für die Radonauswertung (aus Po-218). Dadurch ergibt sich eine weitere quantitativ schlecht abzuschätzende Verringerung der Nachweiseffektivität bzgl. Thoron.

## Bewertung der Ergebnisse für Geräte mit elektrostatischer Anreicherung

Grundsätzlich bieten diese Radonmessgeräte die Möglichkeit, Thoron und Radon separat zu messen, bzw. die Querempfindlichkeit der Komponenten untereinander zu minimieren. Dazu müssen die Spektren ausgewertet und geeignete Korrekturmechanismen angewendet werden. In den untersuchten handelsüblichen Monitoren ist eine solche Korrektur nur beim RTM 2000 implementiert. Bei allen nicht korrigierten Messgeräten wird beim Vorhandensein von Thoron in der Messluft grundsätzlich die Radonanzeige beeinflusst. Der Anteil des Thoron an der Messgeräteanzeige für Radon wird durch Eingangsverluste und spektrometrische Bewertung der Impulsmessung bestimmt und liegt bei nicht korrigierten Geräten in einem Bereich von 0,15 – 0,35. Dieser Einfluss ist stark zeitabhängig und tritt bei Kurzzeitmessungen kaum in Erscheinung.

Soll Thoron bei den dafür vorgesehenen Geräten selektiv gemessen werden, sind grundsätzlich Korrekturen für das Übersprechen der Po-214-Peaks in die Po-216-ROI's notwendig, die jedoch in der Regel nicht implementiert sind.

### 5.3.2 Untersuchungen an Geräten mit Gitterionisationskammer (ATMOS)

Bei der Verwendung von Gitterionisationskammern können die registrierten Impulse der Alphastrahlung, die im Messkammervolumen emittiert wird, ebenfalls spektrometrisch bewertet werden. Zur gegenseitigen Beeinflussung der verschiedenen Nuklide gilt prinzipiell das bei den elektrostatischen Detektoren Gesagte. Das Alphaspektrum einer Gitterionisationskammer unterscheidet sich gegenüber den HL-Spektren im Wesentlichen durch das Auftreten eines Untergrundes, der durch Alphateilchen, die in den Randbereich der Messkammer emittiert werden, hervorgerufen wird. Zerfallsprodukte sind zum großen Teil auf den Elektrodendrähten abgeschieden, und erzeugen deshalb geringere Peakhöhen als die vom Tn-Gas emittierten Alphateilchen. Die Halbwertsbreite der Peaks ist größer als bei der elektrostatischen Anreicherung und beträgt ca. 0,3 MeV. Der Effekt der Verringerung der Nachweiseffektivität infolge radioaktiven Zerfalls des Po-216 ist hier nicht zu berücksichtigen.

Genauere Untersuchungen zur Thoronmessung mit dem Messgerät ATMOS wurden im Rahmen eines vom BMU finanzierten Forschungsvorhabens an der PTB Braunschweig durchgeführt. Eine detaillierte Beschreibung der verschiedenen Einflüsse ist im Forschungsbericht „Herstellung und Untersuchung definierter Thoron-Referenzfelder zur Kalibrierung von Thoron-Messgeräten“ enthalten.

Die Abbildung 7 zeigt die gemessenen Spektren für Thoron und Radon

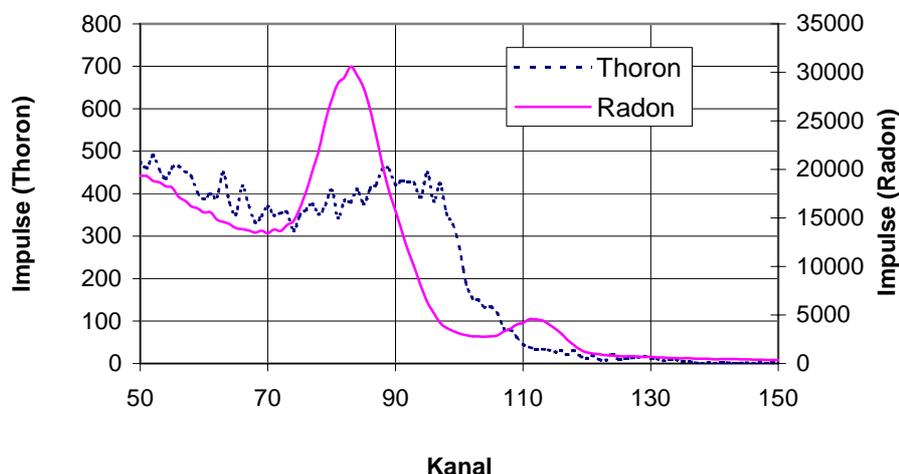


Abbildung 7: Spektren für Thoron und Radon eines ATMOS

### *Quantitative Abschätzung des Thoroneinflusses auf die Radonanzeige*

Das Verhältnis zwischen den Nachweiseffektivitäten des Messgerätes von Thoron- und Radon  $a_{ges}$  setzt sich zusammen aus dem durch den Eingangsverlust oder durch inhomogene Verteilung in der Messkammer bedingten Anteil  $a_{Pn}$  und dem durch die Unterschiede in den Alphaenergien der Thoronzerfallskette gegenüber denen der Radonzerfallskette hervorgerufenem Anteil  $a_{ener}$ . Dieser wird aus den dargestellten Spektren (Abbildung 7) deutlich. Für die Radonmessung wird ein ROI von Kanal 75 – 95 benutzt, der die Radon und Po-218- Bereiche einschließt. Die äquivalenten Thoron- und Po-216-Peaks sind energetisch zu etwas höheren Energien verschoben. Das hat zur Folge, dass das Po-216 vollständig und der Thoron-Peak z.T. ausgeblendet werden. Um den durch die energetische Bewertung der gemessenen Impulsraten hervorgerufenen Unterschied zwischen Radon- und Thoronkalibrierung zu ermitteln, wurde für den Fall einer reinen Thoronexposition des Messgerätes das Verhältnis von Impulsrate im „normalen“ Kanalbereich (75-95) zu der Impulsrate in einem Kanalbereich, der zu höheren Energien verschoben wird, bestimmt. Dabei soll die Verschiebung des ROI der Thoronpeak analog zur Radonmessung vollständig in die Messung einbeziehen. Aufgrund der gemessenen Spektren (siehe Abbildung 3) wurde der Kanalbereich 85 - 105 für die Thoronmessung gewählt. Das experimentell gefundene Verhältnis  $a_{ener} = n(75-95)/n(85-105)$  beträgt **0,86**. Durch die willkürliche Wahl des Thoron-ROI wird eine Unsicherheit von ca. 0,05 für diesen Wert hervorgerufen.

Für das Verhältnis der Anzeige des Messgerätes zum Referenzwert bei Thoronexposition wurde experimentell (siehe Abbildung 7) ein Wert von  $a_{ges}=\mathbf{0,53}$  (+- 0,05) ermittelt. Die durch inhomogene Verteilung des Thorons in der Messkammer hervorgerufenen Verminderung der Nachweiseffektivität  $a_{Pn}$  ist nicht bekannt. Sie kann aus  $a_{ges}$  unter Berücksichtigung der Tatsache dass  $a_{ges}= a_{Pn} \cdot a_{ener}$  ist, ermittelt werden. Es ergibt sich der Wert  $a_{Pn}=\mathbf{0,61}$  (+- 0,07). Dieser Wert ist aufgrund des Luftdurchsatzes und der Messkammergeometrie plausibel. Prinzipiell bestätigen die Messwerte das aus dem physikalischen Messprinzip zu erwartende Verhalten.

Wegen der Exemplarabhängigkeit bei der energetischen Bewertung kann der bei diesen Untersuchungen gefundene Wert für den Anteil des Thoron, der als Radonwert angezeigt wird, von **0,53** nur als Richtwert betrachtet werden.

### *5.3.3 Untersuchungen an Geräten mit Eindraht-Ionisationskammer*

Beim untersuchten Messgerät vom Typ Alphaguard werden je nach Konzentrationsbereich unterschiedliche Mechanismen zur Berechnung der Messgeräteanzeige in Einheiten der Radon-Aktivitätskonzentration angewendet. Der Messwert des Gerätes wird aus den 3 Informationsquellen Alphaspektrum, Gross-Alpha-messung und Ionisationsstrom gebildet. Das Alphaspektrum ist nur in den unteren Konzentrationsbereichen auswertbar. Bei höheren Konzentrationen wird zur Messwertberechnung die Gross-Alpha-messung verwendet. Bei sehr hohen Konzentrationen kann praktisch nur die Messung des Ionisationsstromes zur Messwertbildung herangezogen werden. Die Übergänge zwischen den verschiedenen Bereichen werden durch mathematische Algorithmen fließend gestaltet. Nachvollziehbare Einschätzungen über den Thoroneinfluss sind deshalb schlecht möglich. Es ist zu erwarten, dass zumindest bei höheren Konzentrationen das Messgerät keine durch energetische Bewertung hervorgerufenen Unterschiede zwischen Radon und Thoron-Nachweiseffektivität besitzt. Unterschiede können im wesentlichen hier nur durch Eingangsverluste bzw. Inhomogenitäten hervorgerufen werden. Das Messgerät AG kann im Diffusionsbetrieb und

im Durchflussbetrieb arbeiten. Für den Diffusionsbetrieb kann ein Wert von  $C/C_0 = 0,3$  abgeschätzt werden. Bei dieser Einschätzung ist jedoch nicht die Inhomogenität der Thoronkonzentration in der Messkammer berücksichtigt worden.

Aus dem Verlauf der Anzeige des Messgerätes mit Durchflussbetrieb ist zu erkennen, dass auch bei reiner Thoronatmosphäre der theoretische Wert von  $1500 \text{ Bq/m}^3$  angezeigt wird und damit die Annahme ungefähr gleicher Nachweiseffektivitäten für Radon und Thoron gerechtfertigt ist. Für das im Diffusionsbetrieb arbeitende Gerät ergibt sich wie zu erwarten eine deutlich geringere Anzeige. Das Verhältnis von Anzeige zu Referenzwert beträgt **0,3**.

## 6 Messungen an Kernspurdosimetern

Kernspurdosimeter ist passive Systeme, bei denen die Messluft in eine Kammer diffundiert, die eine Detektorfolie enthält. Ein Teil der Folgeprodukte der die Kammer erreichende Messluft schädigt die Folie. Diese Schädigung ist ein Maß für die Radonkonzentration. Je nach Diffusionsgeschwindigkeit in das Messvolumen wird das Thoron in die Messkammer kommen oder vorher auf dem Weg dorthin überwiegend zerfallen.

Bei den untersuchten Kernspurdosimetern konnte in zwei Typen unterschieden werden. Zum einen in Systeme, die nur einen Filter als Diffusionsbarriere besaßen, zum anderen in Systeme, die gekapselt waren und damit eine größere Diffusionsbarriere haben.

Es wurden sechs verschiedene Arten an Kernspurdosimetern getestet, darunter zwei Testsysteme. Die Dosimeter wurden in einer  $0,363 \text{ m}^3$  großen Glovebox für ungefähr eine Woche einer vorgegebenen Konzentration ausgesetzt, die mit den ausgemessenen Quellen hergestellt wurde. Die exponierten Dosimeter wurden dann an die Auswertestellen zurückgeschickt, die die Ergebnisse ermittelten. An der Untersuchung nahmen das Bundesamt für Strahlenschutz, das Kernforschungszentrum Karlsruhe, die Firma Altrac und die GSF teil.

Für die Exposition mit Thoron wurden die Dosimeter für 168 Stunden einer Konzentration von  $5400 \text{ Bq/m}^3$  ausgesetzt, sodass sich eine Exposition von  $910 \text{ kBq}\cdot\text{h/m}^3$  ergab. In der Tabelle 7 sind die ausgewerteten Daten der getesteten Systeme aufgezeigt.

Die Systeme 1 und 2 verwenden beide einen Filter als Diffusionsbarriere. Dieses erklärt, dass diese Systeme ein größeres Thoronsignal registriert als die übrigen Systeme. Der Anteil des Thoron, der auf dem Weg in die Messkammer zerfällt ist deutlich kleiner.

Die gute Diffusion in die Kammer führt aber zu gleichmäßigen Messergebnissen. Die Systeme 4 bis 6 weisen eine relativ große Streuung der Ergebnisse auf. Dieses deutet darauf hin, dass die Diffusionsbarriere bei den einzelnen Detektoren variiert.

Um diese Ergebnisse zu kontrollieren, wurde eine Testmessung durchgeführt, in der die Systeme in eine Mischatmosphäre aus Radon und Thoron gebracht wurde. Diese Messung sollte zum einen den zuvor gezeigten Thoroneinfluss bestätigen und zum anderen die Verfälschung der Radonkonzentration bei Anwesenheit von Thoron deutlich machen.

Für diese Messung wurden die Systeme für 168 Stunden in eine Mischatmosphäre von  $5950 \text{ Bq/m}^3$  Radon und  $5300 \text{ Bq/m}^3$  Thoron eingebracht. Daraus ergeben sich Expositionen von  $1000 \text{ kBq}\cdot\text{h/m}^3$  an Radon und  $890 \text{ kBq}\cdot\text{h/m}^3$  an Thoron. Die von den Auslestellen ermittelten Ergebnisse sind in der Tabelle 8 aufgeführt.

	<b>System 1</b>	<b>System 2</b>	<b>System 3</b>	<b>System 4</b>	<b>System 5</b>	<b>System 6</b>
	467,05	199,53	92,57	23,14	62,61	66,99
	439,57	188,76	84,16	64,72	55,63	42,83
	490,18	164,35	72,37	60,42	89,37	61,60
	533,56	146,43	79,95	25,41	57,65	65,81
	479,34	156,53	84,16		84,66	16,75
	526,33	144,58	74,06		57,14	20,79
	485,84	141,63	70,69		60,51	47,79
<b>Mittelwert [kBq·h/m<sup>3</sup>]</b>	<b>488,84</b>	<b>163,12</b>	<b>79,71</b>	<b>43,42</b>	<b>66,80</b>	<b>46,08</b>
Standardabw. [kBq·h/m <sup>3</sup> ]	32,68	22,78	7,88	22,20	14,07	20,74
Standardabw. [%]	6,69	13,96	9,88	51,11	21,06	45,01

Tabelle 7: Ergebnisse der Kernspurdosimeter bei einer Thoron-Exposition von 910 kBq·h/m<sup>3</sup>

Es ist zu erkennen, dass das System 1 das Thoronsignal wieder gut mitgenommen hat, währenddessen der Thoroneinfluss beim System 2 nicht offensichtlich wird. Die übrigen Systeme bestätigen ihren geringen Thoroneinfluss und werden auch in ihrer Schwankungsbreite deutlich besser. Hier fällt allerdings das System 6 heraus, welches ein Testsystem im Entwicklungsstadium war. Beim System 4 scheint bei der Auswertung ein falscher Umrechnungsfaktor verwendet worden zu sein, da der Wert deutlich zu niedrig liegt.

	<b>System 1</b>	<b>System 2</b>	<b>System 3</b>	<b>System 4</b>	<b>System 5</b>	<b>System 6</b>
	1607,91	744,43	942,54	309,86	1004,14	850,30
	1680,93	699,94	858,38	328,09	1100,50	881,19
	1672,98	1161,81	908,87	295,25	1190,63	1022,40
	1650,57	1306,18	841,55	232,46	948,68	193,98
	1671,53	834,12	875,21	316,29	996,40	203,49
	1653,46	786,98	908,87	376,91	995,64	961,30
	1872,52	964,84	917,29		1146,70	365,49
<b>Mittelwert [kBq·h/m<sup>3</sup>]</b>	<b>1687,13</b>	<b>928,33</b>	<b>893,25</b>	<b>309,81</b>	<b>1054,67</b>	<b>639,73</b>
Standardabw. [kBq·h/m <sup>3</sup> ]	85,24	228,56	35,85	47,06	91,03	368,94
Standardabw. [%]	5,05	24,62	4,01	15,19	8,63	57,67

Tabelle 8: Ergebnisse der Kernspurdosimeter bei einer Thoron-Exposition von 890 kBq·h/m<sup>3</sup> und einer gleichzeitigen Radon-Exposition von 1000 kBq·h/m<sup>3</sup>

Zur Kontrolle wurden die verwendeten Kernspur-Systeme auch in eine reine Radonatmosphäre eingebracht. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 9 und 10 dargestellt. Es wird deutlich, dass die Systeme das Radon überwiegend gut messen, der zu geringe Umrechnungsfaktor des System 4 bestätigt sich.

In der Abbildung 8 sind die Ergebnisse der einzelnen Kernspur-Systeme noch einmal graphisch zusammengestellt. Hierbei erkennt man gut das zuvor beschriebene Verhalten.

	System 1	System 2	System 3	System 4	System 5	System 6
	2617,92		1775,67	1446,93	1900,39	1725,01
	2432,83		1531,62	1167,55	1810,26	1725,60
	2500,79		1699,93	1168,59	1712,39	2074,51
	2749,50		1641,02	1229,88	801,41	117,48
	2339,57		1615,78	1730,31	1827,17	1670,98
	2578,15		1624,19	1117,54	1924,29	2001,54
	2270,88		1607,36		1865,72	1755,22
<b>Mittelwert [kBq·h/m³]</b>	<b>2498,52</b>		<b>1642,23</b>	<b>1310,10</b>	<b>1691,66</b>	<b>1581,48</b>
Standardabw. [kBq·h/m³]	165,83		77,04	236,29	398,62	663,63
Standardabw. [%]	6,64		4,69	18,04	23,56	41,96

Tabelle 9: Ergebnisse der Kernspurdosimeter bei einer Radon-Exposition von 1900 kBq/h/m³

	System 1	System 2	System 3	System 4	System 5	System 6
	2764,68	2728,73	1683,10		817,65	1789,64
	2553,57	3140,96	1615,78		1723,92	1821,11
	2531,88	4074,33	1514,79		1901,15	1855,53
	2628,04	2818,40	1708,35		1915,79	1741,59
		2848,23				
		2247,85				
		4250,91				
<b>Mittelwert [kBq·h/m³]</b>	<b>2,619,54</b>	<b>3158,49</b>	<b>1630,50</b>		<b>1589,63</b>	<b>1801,97</b>
Standardabw. [kBq·h/m³]	105,16	736,92	86,47		521,99	48,42
Standardabw. [%]	4,01	23,33	5,30		32,84	2,69

Tabelle 10: Ergebnisse der Kernspurdosimeter bei einer Radon-Exposition von 1800 kBq/h/m³

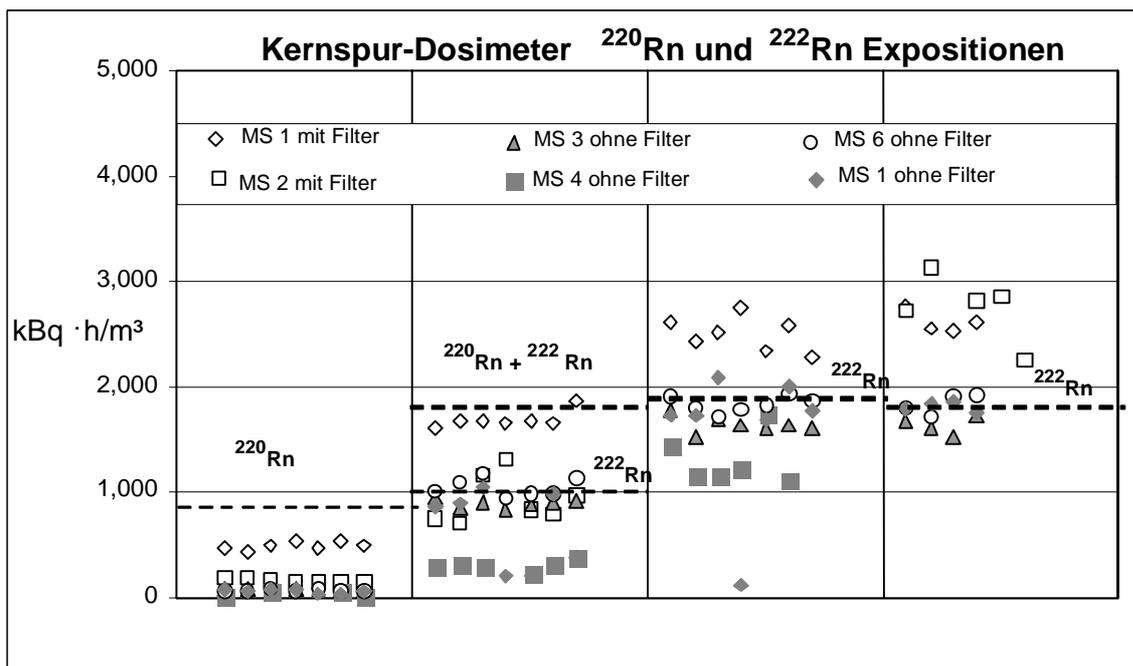


Abbildung 8: Übersicht der Expositionen der einzelnen Kernspur-Systeme

## **7. Zusammenfassung**

Im der vorliegenden Untersuchung wurden verschiedene Messsysteme für Radon auf ihre Empfindlichkeit gegenüber Thoron getestet.

Die meisten untersuchten Geräte basieren auf einer spektrometrischen Auswertung. 2 Geräte besitzen eine gesonderte Auswertung für Thoron (RTM 2000 und ERS 2). Dabei wird jeweils der Po-216 ROI als Maß für die Thoronkonzentration benutzt. Das personenbezogene Exposimeter DOSEman und das ERS erlauben die Spektrenaussage und damit eine quantitative Einschätzung des Thoroneinflusses auf die Radonmessung. Beim Messgerät RTM ist der Einfluss aufgrund des Zeitverlaufes der Anzeige bei Thoron- und Thoron-Radon-Mischatmosphären einzuschätzen.

Grundsätzlich bieten die Radonmessgeräte auf Grundlage der elektrostatischen Abscheidung die Möglichkeit, Thoron und Radon separat zu messen, bzw. die Querempfindlichkeit der Komponenten untereinander zu minimieren. Dazu müssen die Spektren ausgewertet und geeignete Korrekturmechanismen angewendet werden. In den untersuchten handelsüblichen Monitoren ist eine solche Korrektur nur beim RTM 2000 implementiert. Bei allen nicht korrigierten Messgeräten wird beim Vorhandensein von Thoron in der Messluft grundsätzlich die Radonanzeige beeinflusst. Der Anteil des Thoron an der Messgeräteanzeige für Radon wird durch Eingangsverluste und spektrometrische Bewertung der Impulsmessung bestimmt und liegt bei nicht korrigierten Geräten in einem Bereich von 0,15 – 0,35. Dieser Einfluss ist stark zeitabhängig und tritt bei Kurzzeitmessungen kaum in Erscheinung.

Bei den passiven Systemen ist die Querempfindlichkeit zum Thoron stark von der Diffusionsbarriere abhängig. Dieses hat zur Folge, dass bei den mit Eingangsfiltren arbeitenden Systemen der Thoronanteil am Messsignal deutlich höher ist als bei den Systemen, die den Gaseintritt verzögern. Auf Grund dieses Verhaltens haben einzelne Systeme das Radon gut gemessen, da sie das Thoron durch Verzögerung überwiegend aus der Messkammer ferngehalten haben.

## **8. Danksagung**

An dieser Stelle soll Herrn Dr. V. Schmidt vom Bundesamt für Strahlenschutz in Berlin für seine Unterstützung bei der Untersuchung der kommerziellen aktiven Messverfahren gedankt werden.