

Schlüsselwörter*Geogene Radioaktivität**Radon**Radonfolgeprodukte**Radonmeßmethoden*

Bestimmung von Radon und Radonfolgeprodukten in Luft: Eine aktuelle Vergleichsmessung.

FRANZ JOSEF MARINGER, HERIBERT KAINEDER, PETER KINDL, HERBERT LETTNER, LUTZ MOSSBAUER & CHRISTIAN SAIDLER*)

4 Abbildungen, 1 Tabelle

Inhalt

Zusammenfassung	25
Abstract	25
1. Einführung	26
2. Methoden und Geräte	26
2.1 Kalibrierraum	26
2.2 Radonquelle	26
2.3 Radonmeßgeräte	26
2.4 Radonfolgeproduktmeßgeräte	26
3. Ergebnisse	27
4. Diskussion	29
Literatur	29

Zusammenfassung

Diese Arbeit beschreibt die Ergebnisse einer Vergleichsmessung von aktiven, automatisch aufzeichnenden Radon- und Radonfolgeproduktmeßgeräten. Die Meßgeräte (fünf Radon- und drei Folgeproduktmeßgeräte) wurden über einen Zeitraum von einer Woche im Sommer 1993 in einem abgedichteten Kellerraum mit Radon und -Folgeprodukten exponiert.

Die Einzelmeßwerte der verschiedenen Meßgeräte weichen deutlich voneinander ab (vereinzelt bis knapp 100%), die Wochenmittelwerte liegen jedoch mit einer Ausnahme innerhalb der Meßunsicherheitsgrenzen. Aus den Ergebnissen kann gefolgert werden, daß es bei sorgfältiger Kalibrierung möglich ist, Radon- und dessen Folgeprodukte mit aktiven Meßmethoden in strahlenschutzrelevanten Aktivitätsbereichen mit einer relativen Meßunsicherheit von rund $\pm 10\%$ zu bestimmen.

Determination of radon and radon progenies in air: a current intercomparison exercise.

Abstract

The results of an intercomparison exercise of active, automatic recording radon and radon progeny measuring instruments are presented. The instruments – five radon and three progeny monitors – were exposed to radon in a sealed cellar room in the summer of 1993 during an observation period of one week.

The individual figures of the particular instruments deviated clearly (sometimes up to 100%). There was only one exception, in which the mean values of the total measuring period (one week) did not diverge at an unacceptably high rate. In regard to these results, it has to be possible to measure indoor air activity concentrations of radon and radon progeny after a reliable calibration procedure with a total measuring uncertainty of not more than $\pm 10\%$.

*) Anschriften der Verfasser: FRANZ JOSEF MARINGER, Geotechnisches Institut, Bundesforschungs- und Prüfzentrum Arsenal, Faradaygasse 3, A-1030 Wien; HERIBERT KAINEDER, Abt. Umweltschutz, Amt der Oberösterreichischen Landesregierung, Stockhofstraße 40, A-4021 Linz; PETER KINDL, Institut für Kernphysik, Technische Universität Graz, Petersgasse 16, A-8010 Graz; HERBERT LETTNER, Institut für Physik und Biophysik, Universität Salzburg, Hellbrunnerstraße 34, A-5020 Salzburg; LUTZ MOSSBAUER, BGT Boden- u. Grundwassererkundungs- u. Sanierungsges.m.b.H., Keplerplatz 14, A-1100 Wien; CHRISTIAN SAIDLER, Berthold Analytische Instrumente Vertriebsges.m.b.H., Ameisgasse 49-51, A-1140 Wien.

1. Einführung

Die meßtechnische Erfassung der Radon- und Radonfolgeprodukt-Aktivitätskonzentration in Luft zur Beurteilung der Strahlenbelastung von Personen in Innenräumen von Wohn- und Betriebsgebäuden in Gebieten mit hohem Radonpotential, sowie im Untertagebergbau und in Radonkurbetrieben, stellt hohe Anforderungen an die Genauigkeit und Reproduzierbarkeit der dabei angewandten Methoden. Besonders dann, wenn kostenintensive Sanierungsmaßnahmen in Gebäuden mit inakzeptabel hohen Radonaktivitätskonzentrationen ins Auge gefaßt werden müssen, ist aus wirtschaftlicher Sicht eine präzise Erfassung der zeitlichen und räumlichen Verteilung der Radonaktivitätskonzentration zur Ermittlung der Radonquellen des untersuchten Gebäudes (Eintrittsorte und Quellstärken) erforderlich.

Das fortschreitende Wissen um das Strahlenbelastungspotential von Radon und seinen Folgeprodukten und die daraus resultierenden Bemühungen der internationalen Strahlenschutzgremien sowie der nationalen Gesundheitsbehörden (FRIEDMANN et al., 1994) verursachte in den vergangenen Jahren eine Vielzahl an Neu- und Weiterentwicklungen von Radon- und Radonfolgeproduktmeßgeräten. Der aktuelle Stand des Wissens und die bisherigen Erfahrungen auf dem Gebiet der meßtechnischen Erfassung von Radon und seinen Folgeprodukten ist in Monographien (z.B. NAZAROFF & NERO, 1988) und zahlreichen Einzelarbeiten (z.B. in VÖLKLE & BORCHARDT, 1991) dokumentiert. Wegen der Vielzahl der Innenraum- und Umgebungsparameter (z.B. Luftfeuchte, Aerosolkonzentration, Innenraumboberflächen, Luftströmungen, Bodenluftpermeabilität), die eine meßtechnische Erfassung der Radon- und Radonfolgeprodukt-Aktivitätskonzentration beeinflussen, stellt diese Meßaufgabe besonders hohe Anforderungen an die fachgerechte und sorgfältige Durchführung und die sachkundige Beurteilung der Meßergebnisse. Bei kommerziell erhältlichen Meßgeräten sind daher laufend die angegebenen Kalibrierfaktoren, Meßgenauigkeiten und die Reproduzierbarkeit der Meßwerte zu überprüfen (SCHULLER & WERNLI, 1991; MARINGER, KINDL, MOSSBAUER & STADTMANN, 1994).

Im Zuge dieser Arbeit wurden acht derzeit kommerziell erhältliche aktive, aufzeichnende Radon- und Radonfolgeproduktmeßgeräte unter realitätsnahen Bedingungen in einem adaptierten Kellerraum über einen Zeitraum von einer Woche mit Radon und Radonfolgeprodukten exponiert. Anschließend wurden die Meßwerte und die Meßunsicherheiten der einzelnen Meßgeräte miteinander verglichen und Abweichungen voneinander ermittelt und beurteilt.

2. Methoden und Geräte

2.1 Kalibrierraum

Der für diese Vergleichsmessung angewandte fensterlose Kellerraum mit einem Eingang hat eine Grundfläche von etwa $4\text{ m} \times 2,5\text{ m}$, eine Raumhöhe von 3 m und damit ein Volumen von ca. 30 m^3 (abzüglich eines eingebauten Betonsockels von etwa 4 m^3 Rauminhalt ergibt dies ein effektives Raumvolumen von ca. 26 m^3). Boden, Decke und Wände sind aus Beton gefertigt und mit Ausnahme der Decke mit Keramikfliesen gekachelt. Die von der früheren Verwendung herrührenden Mauerdurchbrüche wurden mit einer Kunststoffolie und Kleband, die Tür mit einer Klebedichtlippe abgedichtet. Die Raumtemperatur lag während der Untersuchungsperiode (22. bis 29. Juli 1993) zwischen 22°C und 25°C , die relative Luftfeuchte zwischen 70% und 75% .

2.2 Radonquelle

Als Radonquelle wurde eine Ra-226-Standardlösung (Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig, BRD; PTB-9132) mit einer Aktivität von rund 3000 Bq in einem Becherglas mit $500\text{ ml H}_2\text{O}$ mit einem Magnetrührer bei Umgebungstemperatur permanent emaniert. Die Luftumwälzung wurde mit einem Raumluftventilator durchgeführt. Damit wurden die natürlich vorhandenen Aerosole ebenfalls mitbewegt.

Im Folgenden werden die verwendeten Meßgeräte kurz spezifiziert.

2.3 Radonmeßgeräte

Zwei Ionisationskammern im Durchflußbetrieb mit Impulsauswertung (ATMOS 12 DPX), Vielkanalanalysator mit alphaspektrometrischer Auswertung; aktives Kammervolumen ca. $0,6\text{ L}$ (Bauvolumen $2,3\text{ L}$), Luftdurchfluß 1 L/min (Membranpumpe), relative Meßunsicherheit etwa $\pm 10\%$ bei $100\text{ Bq/m}^3\text{ Rn-222}$ und 1 h Integrationszeit, Nachweisgrenze ca. 3 Bq/m^3 (1 h Integrationszeit).

Lucas-Zelle im Durchflußbetrieb (Silena PRASSI 5S), ZnS(Ag)-Zelle, Volumen $1,83\text{ L}$, Luftdurchfluß 3 L/min , Nachweisgrenze ca. 4 Bq/m^3 (1 h Integrationszeit).

Diffusionskammer mit Halbleiterdetektor (ALNOR).

Lucas-Zelle im Diffusionsbetrieb (Pylon AB5 mit CPRD-Sonde), aktives Zellenvolumen 272 ml , Nachweisgrenze ca. 37 Bq/m^3 .

2.4 Radonfolgeproduktmeßgeräte

Schrittbandfiltergerät mit Si-Oberflächensperrschichtdetektoren (Alpha Nuclear SMART 700), 2 SSB-Detektoren á

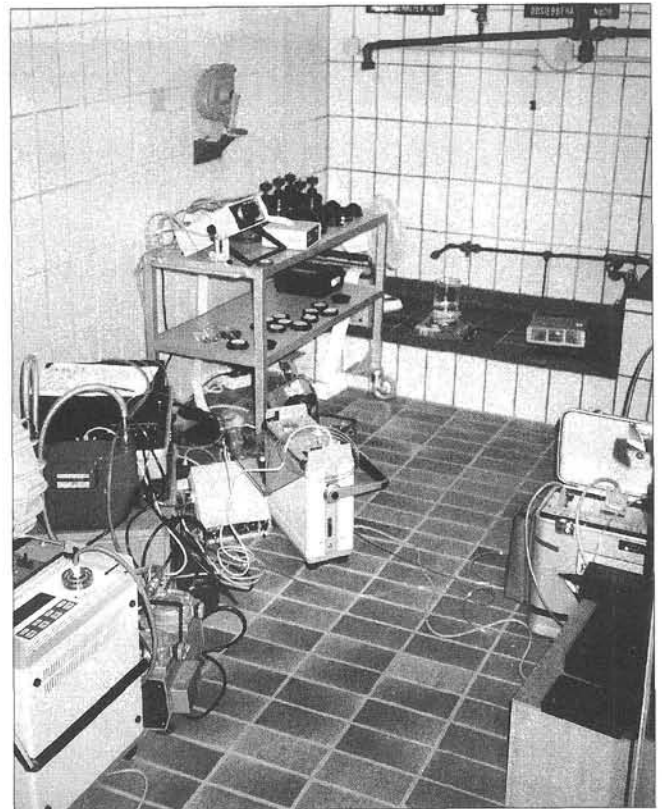


Abb. 1 Radon- und Radonfolgeproduktmeßeinrichtungen während der Vergleichsmessung (Radonkalibrierkammer des Geotechnischen Instituts).

400 mm², Membranpumpe mit 20 L/min., alphaspektrometrische Auswertung, Nachweisgrenze: 1,5 Bq/m³ $c_{\text{EERn-222}}$ (1 h Meßzeit).

Filtermeßgerät mit Si-Oberflächensperrschichtdetektor (Silena 4S), 1 SSB-Detektor 450 mm², Membranpumpe 3 L/min., Nachweisgrenze 3,7 Bq/m² $c_{\text{EERn-222}}$ (1 Stunde Meßzeit).

Filtermeßgerät mit ZnS(Ag)-PM-Detektor (Pylon AB5), Detektor, Membranpumpe 3 L/min., Nachweisgrenze 3,7 Bq/m³ $c_{\text{EERn-222}}$ (1 Stunde Meßzeit).

Sämtliche Meßgeräte sind mit einer automatischen, kontinuierlichen Meßdatenaufzeichnung und Speicherung ausgerüstet. In der Abb. 1 sind die aufgebauten und in Betrieb stehenden Meßgeräte in der Radonkalibrierkammer zu sehen.

3. Ergebnisse

Die Radonquelle wurde am 20. Juli 1993 in den Kalibrierraum eingebracht. Die Meßgeräte wurden am 22. Juli 1993 um 12 Uhr gestartet. Anschließend wurde die Tür zum Kalibrierraum geschlossen. In den folgenden Tagen wurde der Kalibrierraum einmal täglich zur Kontrolle der Meßgerätefunktion, der Raumtemperatur und Luftfeuchte betreten. Am 26. Juli 1993 wurde der Meßraum in der Zeit von 13 bis 14:15 belüftet. Die Vergleichsmessung wurde am 29. Juli 1993 um 12 Uhr beendet.

Abb. 2 zeigt die zeitlichen Verläufe der Meßwerte der Radonmeßgeräte. Die zeitliche Tendenz (Anstieg nach Verschließen der Türe, Abfall bei Belüftung, tageszeitliche Schwankun-

gen) werden von allen fünf Meßgeräten gleichartig wiedergegeben. Die Meßpunkte der einzelnen Meßgeräte zu einem Zeitpunkt weichen jedoch voneinander signifikant ab. Die Meßwerte der Meßgeräte RnG3 und RnG5 differieren an einigen Zeitpunkten um den Faktor 1,8 (bzw. 0,56), die Meßwerte der drei anderen Meßgeräte liegen generell zwischen den Extremwerten dieser beiden Meßgeräte. Ein großer Teil der Differenzen der Einzelmeßpunkte verschiedener Meßgeräte ist auf statistische Schwankungen zurückzuführen, wie weiter unten gezeigt wird.

Die Meßwerte für die gleichgewichtsäquivalente Radon-222-Folgeproduktkonzentration ($c_{\text{EERn-222}}$) der drei Radonfolgeproduktmeßgeräte liegen sehr nahe beisammen (Abb. 3). Aus den generellen Trends der drei Meßwertereihen sind neben den statistischen Schwankungen der Einzelwerte geringfügig systematische Abweichungen erkennbar. Da bei der Bestimmung der Folgeprodukte aus einer bestimmten Luftmenge die Radionuklide am Filter abgeschieden werden, beeinflußt die Unsicherheit der Luftmengenbestimmung zusätzlich das Meßergebnis. Die oft angewandte Luftvolumenbestimmung über Druckdifferenz an einem Strömungswiderstand ist dichteabhängig und variiert mit dem barometrischen Luftdruck und mit der Höhenlage. Dieser Einflußfaktor ist bei Meßgeräten, die dieses Prinzip der Luftvolumenmessung anwenden, zu korrigieren.

Der Gleichgewichtsfaktor F – definiert als Verhältnis zwischen der Aktivitätskonzentration $c_{\text{EERn-222}}$ der Folgeprodukte zur Aktivitätskonzentration $c_{\text{Rn-222}}$ von Radon in der Raumluft – ist der wesentliche Parameter für die Beurteilung der inneren Strahlenbelastung nach Messung der Radonaktivitätskonzentrationen.

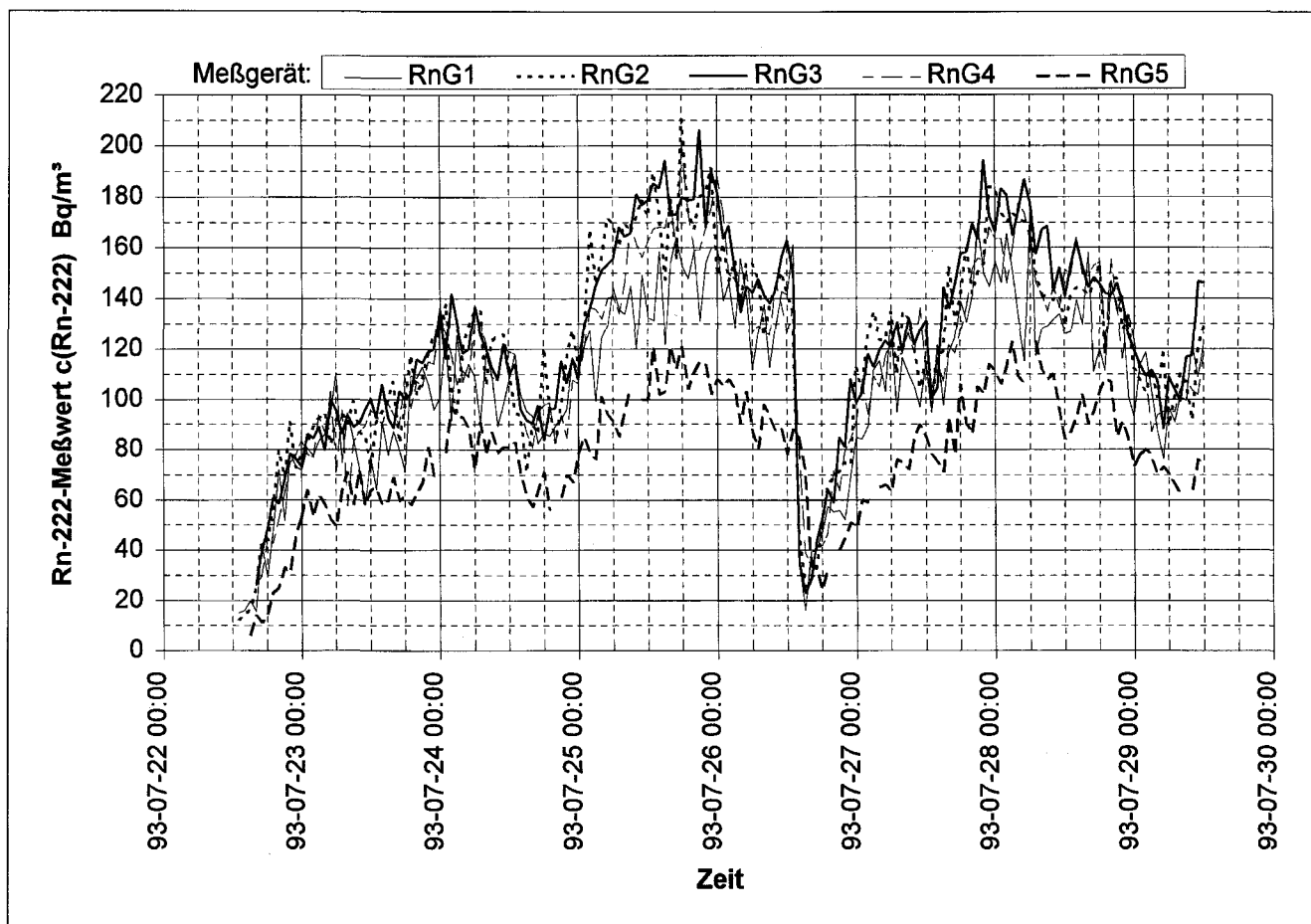


Abb. 2
Zeitlicher Verlauf der gemessenen Radon-222-Aktivitätskonzentrationen.

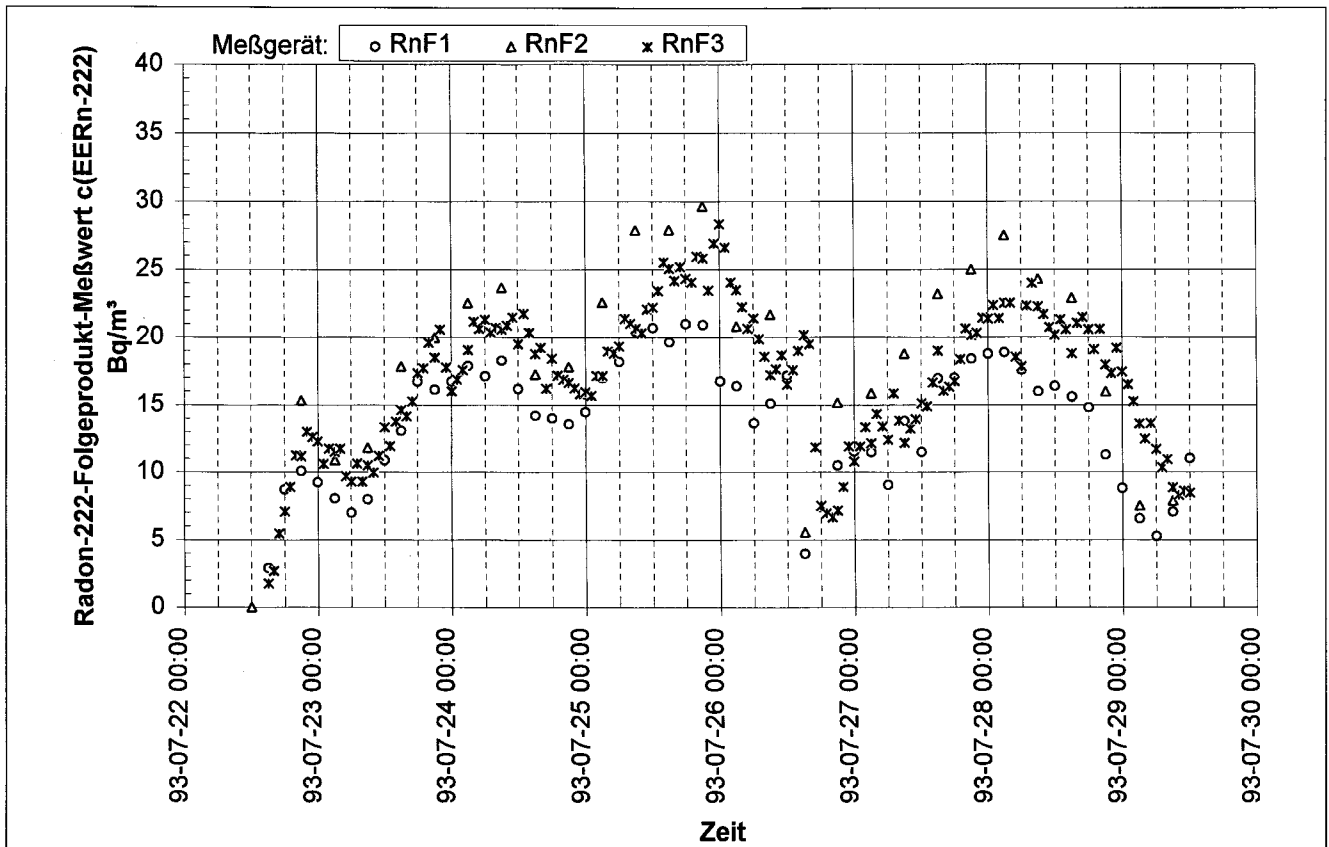


Abb. 3
Zeitlicher Verlauf der gemessenen Radon-222-Folgeproduktaktivitätskonzentrationen.

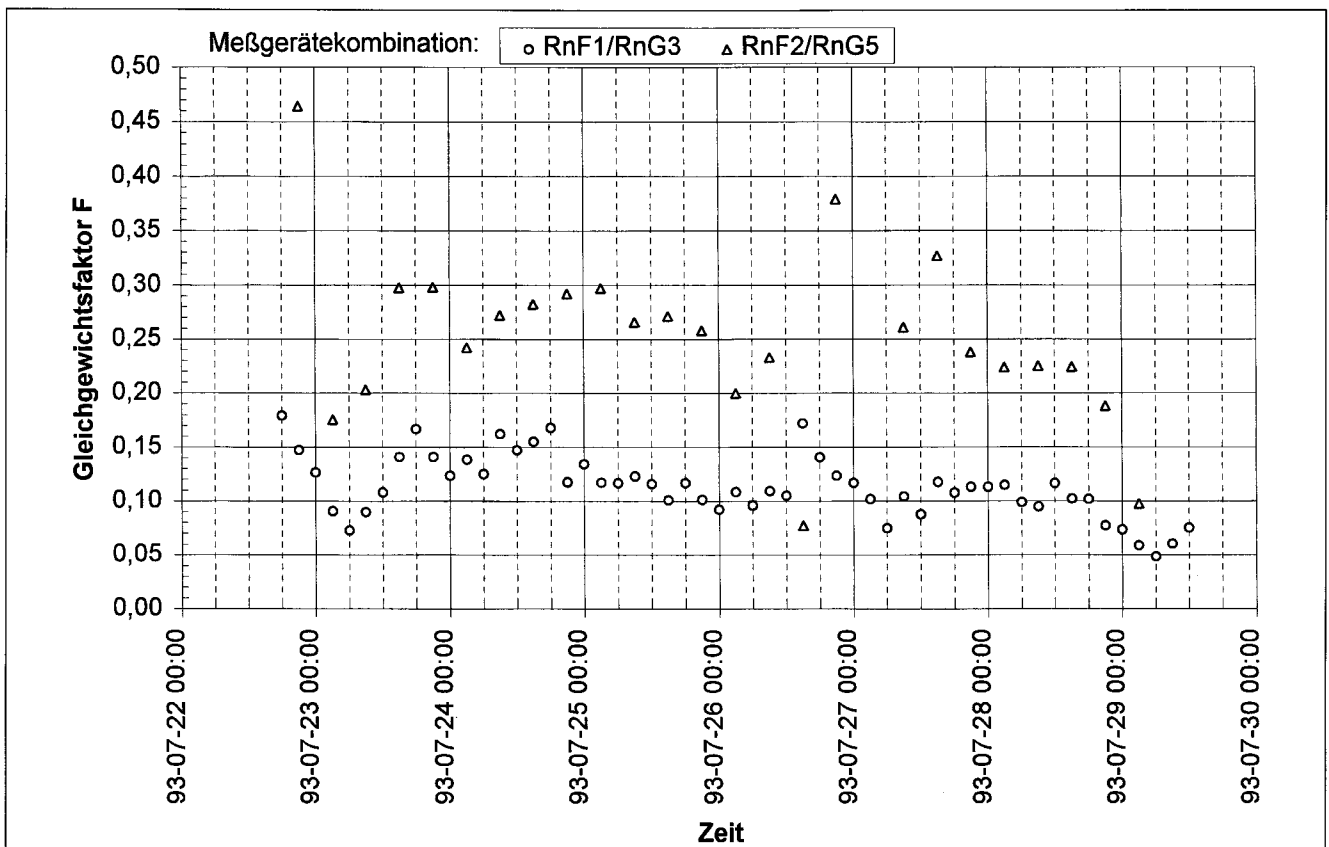


Abb. 4
Extremwerte der Gleichgewichtsfaktoren, die aus unterschiedlichen Meßgerätekombinationen (Radon- und Folgeproduktmessungen) ermittelt wurden.

tration. In der Abb. 4 sind die zeitlichen Verläufe der Gleichgewichtsfaktoren für zwei unterschiedliche Meßgerätekombinationen dargestellt. Da der Gleichgewichtsfaktor aus den Meßwerten von jeweils zwei Meßgeräten (Radon, Folgeprodukte) ermittelt ist, und die Auswahl der Meßgeräte entsprechend vorgenommen wurde, ergeben sich Unterschiede für den Gleichgewichtsfaktor zwischen den beiden Meßgerätekombinationen bis zu einem Faktor von 3 (bzw. 0,33).

Die Mittelwerte der Meßgrößen für das siebentägige Beobachtungsintervall sind in der Tabelle 1 zusammengestellt. Abgesehen vom Radonmeßgerät RnG5 liegen die Mittelwerte der Radonmeßwerte der einzelnen Meßgeräte akzeptabel nahe – innerhalb der Unsicherheitsgrenzen – beisammen. Daraus ist ersichtlich, daß die Unterschiede an einzelnen Zeitpunkten größtenteils auf zählstatistische Schwankungen zurückzuführen sind und diese Unterschiede bei Mittelung über einen größeren Zeitraum abgeschwächt werden. Meßtechnisch gut ist die Übereinstimmung der Mittelwerte der Folgeproduktmessungen (Tab. 1). Lediglich die Unterschiede der zeitlich gemittelten Gleichgewichtsfaktoren sind hoch. Die Mittelwerte für den des Gleichgewichtsfaktor liegen je nach gewählter Meßgerätekombination zwischen 0,1 und 0,25.

4. Diskussion

Die Ergebnisse der Untersuchung zeigen, daß Einzelmeßwerte von aktiven Radon- und Radonfolgeproduktmeßgeräten – je nach verwendetem Meßgerät – stark voneinander abweichen können. Bei der Mittelung von Einzelmeßwerten über einen mehrtägigen Zeitraum werden die zählstatistischen Unsicherheiten ausgeglichen und damit die Gesamtunsicherheiten reduziert. In der vorliegenden Arbeit lag der gemessene Wochenmittelwert eines Radonmeßgeräts außerhalb der Unsicherheitsgrenzen der Mittelwerte der anderen vier Meßgeräte.

Für Meßaufgaben, die eine hohe Reproduzierbarkeit und eine geringe Unsicherheit des einzelnen Meßwerts erfordern, wird es unumgänglich sein, die dafür verwendeten Instrumente – zusätzlich zur gesetzlich vorgeschriebenen Eichpflicht – sorgfältig zu kalibrieren und laufend zu überprüfen. Sowohl im Rahmen wissenschaftlicher Untersuchungen, als auch bei Routinemessungen zur Überprüfung von Richtwertüberschreitungen und damit gegebenenfalls verbundener Aufwand für bauliche Sanierungsmaßnahmen, muß sichergestellt werden, daß die Aktivitätskonzentration von Radon-222 und dessen Folgeprodukten mit meßtechnisch bedingten relativen Unsicherheiten von etwa $\pm 10\%$ reproduzierbar bestimmt werden kann.

Bei Verwendung verschiedener Meßsysteme und Methoden an einem Objekt zur Beurteilung der räumlichen Verteilung der Radon- und -Folgeproduktaktivitätskonzentration ist es erforderlich, die Vergleichbarkeit der Meßwerte der einzelnen Meßgeräte und -methoden sicherzustellen. In diesem Fall ist eine Vergleichsmessung jedenfalls unumgänglich erforderlich.

Tabelle 1

Wochenmittelwerte mit Gesamtunsicherheiten der gemessenen Radon-222- und Radon-222-Folgeprodukt-Aktivitätskonzentrationen.

Meßgerät	Meßgröße ^{*)}	Mittelwert (7-Tage) Bq/m ³	Meß- unsicherheit Bq/m ³
Radonmessung:		110	± 18
RnG1	C_{Rn-222}	108	± 11
RnG2	C_{Rn-222}	120	± 12
RnG3	C_{Rn-222}	125	± 8
RnG4	C_{Rn-222}	118	± 7
RnG5	C_{Rn-222}	79	± 5
Radonfolgeproduktmessung:		17	± 2,5
RnF1	$CEERn-222$	14	± 2
RnF2	$CEERn-222$	19	± 2
RnF3	$CEERn-222$	17	± 1
Gleichgewichtsfaktor:		0,18	± 0,05
RnF1/RnG3	F	0,11	± 0,02
RnF2/RnG5	F	0,25	± 0,04

^{*)} C_{Rn-222} : Radon-222-Aktivitätskonzentration;
 $CEERn-222$: Gleichgewichtsäquivalente Radon-222-Folgeprodukt-
aktivitätskonzentration;
F: Gleichgewichtsfaktor := $CEERn-222/C_{Rn-222}$

Literatur

- FRIEDMANN, H. ET AL., 1994: Ermittlung der Strahlenbelastung der österreichischen Bevölkerung durch Radonexposition und Abschätzung des damit verbundenen Lungenkrebsrisikos – Pilotprojekt. – Forschungsbericht Bd. 2/94 – 95 S., Wien (Bundesministeriums für Gesundheit, Sport und Konsumentenschutz).
- MARINGER, F. J., KINDL, P., MOSSBAUER, L. & STADTMANN, H., 1994: Measurement of Radon in practice – a comparison of methods. – In: Norbert Vana und Alfred Hefner (ed.): Radiation Protection in neighbouring countries in Central Europe. Proc. Austrian-Italian-Hungarian Radiation Protection Symposium 28-30 April 1993, Obergurgl/Tirol. – 427-431, Seibersdorf (Österr. Verband für Strahlenschutz).
- NAZAROFF, W. W. & NERO, A. V., 1988: Radon and its decay products in indoor air. – 518 S, New York (John Wiley & Sons).
- SCHULER, CH. & WERNLI, C., 1991: Kalibrierung von Radonmeßgeräten bei verschiedenen Umweltbedingungen: Einsatzmöglichkeiten der PSI-Radonkammer. – In: Hansruedi Völkle und Dieter Borchardt (ed.): Messung von Radon und Radon-Folgeprodukten. – 119-127, Köln (Verlag TÜV Rheinland)
- VÖLKLE, H. & BORCHARDT, D. (Hrsg.), 1991: Messung von Radon und Radon-Folgeprodukten. – Publikationsreihe Fortschritte im Strahlenschutz. 247 S, Köln (Verlag TÜV Rheinland).

Manuskript eingegangen am: 03. 01. 1995 ●

Revidierte Fassung eingegangen am: 02. 04. 1997 ●

Manuskript akzeptiert am: 11. 05. 1997 ●