

**Verfahren zur Bestimmung der potenziellen
Alpha-Energiekonzentration
der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte
mittels Radonzerfallsprodukt-Monitor**

K-Rn-FOLGE-LUFT-01

Bearbeiter:

T. Beck

Leitstelle für Fragen der Radioaktivitätsüberwachung
bei erhöhter natürlicher Radioaktivität (ENORM)

Verfahren zur Bestimmung der potenziellen Alpha-Energiekonzentration der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte mittels Radonzerfallsprodukt-Monitor

1 Anwendbarkeit

Dieses Messverfahren ist für die Überwachung der potenziellen Alpha-Energiekonzentration (PAEK) der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte (Po-218, Pb-214, Bi-214 und Po-214) in der Luft geeignet.

Mit dem Verfahren kann eine PAEK oberhalb von $30 \text{ nJ}\cdot\text{m}^{-3}$ im Freien und in Räumen nachgewiesen werden. Es erfüllt damit die Anforderungen der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung bei bergbaulichen Tätigkeiten (REI Bergbau).

2 Probeentnahme

2.1 Allgemeine Grundsätze

Bei der Probeentnahme wird die zu untersuchende Luft über ein Schwebstofffilter geleitet, auf dem sich die in der Luft enthaltenen Schwebstoffe abscheiden. Dadurch reichern sich auch die kurzlebigen Zerfallsprodukte des Rn-222 auf dem Filter an. Zur Bestimmung der PAEK wird die Filteraktivität kontinuierlich während der Ansaugung der Luft oder diskontinuierlich nach Unterbrechung des Ansaugvorganges bestimmt. Bei kontinuierlich messenden Radonzerfallsprodukt-Monitoren wird der Wert der Messgröße direkt angezeigt. Bei diskontinuierlich messenden Geräten wird die Probeentnahme zeitlich und unter Umständen auch örtlich von der Messung der Probe getrennt durchgeführt.

Der Wert der PAEK wird in der Regel teilchengrößenunabhängig bestimmt. Es sind nur Messeinrichtungen zu verwenden, die der internationalen Norm DIN IEC 61577-3 genügen (1). Zur Verwendung spezieller Einheiten und Begriffe wird auf (4) und (5) verwiesen.

2.2 Aufbau der Probeentnahmeeinrichtung

Die Probeentnahmeeinrichtung besteht aus einem Probeentnahmekopf und einer Luftfördervorrichtung (z. B. Turbinengebläse, Flügelrad-, Drehschiebervakuum-pumpe). Der Probeentnahmekopf enthält einen Schwebstofffilter, der in einer vorzugsweise aus Metall gefertigten Filterhalterung mit elastischer Dichtung (z. B. Stützsieb, Filter, Flachring, Dichtring) befestigt wird. Die Luftfördereinrichtung muss sich in Strömungsrichtung der Luft hinter dem Schwebstofffilter befinden. Der Luftaustrittsbereich muss vom Lufteintrittsbereich so weit räumlich entfernt sein, dass ein Strömungskurzschluss ausgeschlossen ist.

2.3 Anforderung an das Probeentnahmesystem

Die Luftfördervorrichtung muss so ausgelegt sein, dass bei einer Veränderung des Strömungswiderstandes des Schwebstofffilters eine dadurch hervorgerufene Änderung des Volumenstromes vernachlässigt werden kann. Während der Probeentnahme muss der Volumenstrom innerhalb eines Toleranzbereiches von 5 % konstant bleiben.

Der Schwebstofffilter sollte einen Abscheidegrad von mindestens 99 % besitzen. Für den Einsatz eignen sich z. B. Membranfilter aus Zellulosenitrat mit einer Porengröße von 0,8 µm. Die Filter müssen regelmäßig gewechselt werden, um die durch Staubablagerungen hervorgerufene Erhöhung des Strömungswiderstandes und die dadurch bedingte Verringerung des Volumenstromes zu begrenzen. Die Zyklen des Filterwechsels richten sich nach dem Staubanfall am Messort und dem Volumenstrom.

Die Form des Probeentnahmekopfes sowie die Eintrittsgeschwindigkeit der Luft in den Probeentnahmekopf und die herrschende Windgeschwindigkeit bestimmen das Größenspektrum der angesaugten Aerosolpartikeln. Die Luft sollte direkt und ohne Probeentnahmeleitung dem Schwebstofffilter zugeführt werden, um den Teilchenverlust, insbesondere den Verlust von nicht an Aerosolpartikeln angelagerten Radon-Zerfallsprodukten, zu minimieren. Bei anisokinetischer Probeentnahme mit kleiner Eintrittsgeschwindigkeit in den Probeentnahmekopf und demgegenüber hoher Windgeschwindigkeit verschiebt sich das Größenspektrum der gesammelten Teilchen zu größeren Durchmessern.

2.4 Standort der Probeentnahmeeinrichtung

Die Probeentnahme erfolgt in einer Höhe von ca. 1,5 m über dem Boden. Bei Probeentnahmen im Freien ist darauf zu achten, dass die Probeentnahmeeinrichtung sowohl vor Nässe und Schmutz als auch vor starker Sonnenbestrahlung geschützt ist.

Bei Probeentnahmen in Räumen sollten die Probeentnahmeeinrichtungen frei im Raum aufgestellt werden, ohne dass diese von anderen Gegenständen verdeckt werden. Der Aufstellungsort sollte so gewählt werden, dass ein Mindestabstand von 30 cm zu der nächstgelegenen Oberfläche (Wand, Boden, Decke) eingehalten wird. Die unmittelbare Nähe zu Türen, Fenstern oder Heizungen sollte vermieden werden.

3 Analyse

Eine chemische Analyse entfällt bei diesem Verfahren.

4 Messung der Aktivität

4.1 Prinzip des Messverfahrens

4.1.1 Kontinuierliche Messverfahren

Bei kontinuierlich messenden Radonzerfallsprodukt-Monitoren werden die Aktivitäten der auf dem Schwebstofffilter abgeschiedenen kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte in der Regel durch alphaspektrometrische Messungen während der Probeentnahme ermittelt und die PAEK angezeigt.

4.1.2 Diskontinuierliche Messverfahren

Bei diskontinuierlich messenden Geräten werden die Aktivitäten der auf dem Schwebstofffilter abgeschiedenen kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte mittels alphaspektrometrischer Messungen bestimmt und daraus die PAEK ermittelt. Alternativ kann auch nach Beendigung der Probeentnahme der zeitliche Verlauf der Gesamt-Alphaaktivität auf dem Schwebstofffilter gemessen und daraus die PAEK ermittelt werden.

Ein diskontinuierliches Messverfahren, das eine weite Verbreitung vor allem in Messgeräten für die Überwachung der Strahlenexposition bei Bergarbeitern gefunden hat, ist das Verfahren nach MARKOV (2). Es gestattet die Ermittlung der potenziellen Alpha-Energiekonzentration kurzlebiger Radon-222-Zerfallsprodukte durch ein Impulzzählverfahren mit nur einem Zählintervall. Der Messzyklus ist in Abbildung 1 schematisch dargestellt. Nach einer Sammelzeit von 5 Minuten wird der Ansaugvorgang unterbrochen. Im Anschluss an eine Pause von 7 Minuten wird die Gesamt-Alphaimpulsanzahl N des Filters während einer Messdauer von 3 Minuten gemessen.

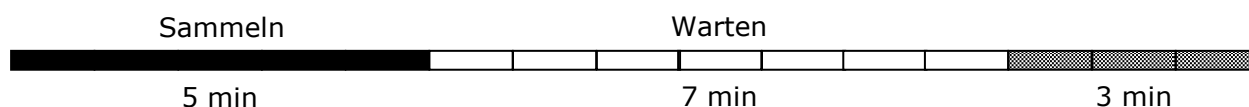


Abb. 1: Zeitschema des Messzyklus für Sammeln und Zählen nach MARKOV

4.2 Kalibrierung

Die Kalibrierungen der Messgeräte erfolgen in einer großvolumigen Kammer, mit bekannten Aktivitätskonzentrationen der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte. Dazu wird eine künstliche Atmosphäre mit bekannter Aerosolpartikelkonzentration und -größenverteilung hergestellt. Während der Kalibrierungsmessung sollte die Atmosphäre ausreichend homogen und zeitlich stabil sein. Dies wird sowohl durch die Konstanz der klimatischen Parameter als auch durch die Beachtung der aerosolphysikalischen Prozesse, wie z. B. der Oberflächendeposition und der Koagulation der Aerosolpartikeln, erreicht.

Die Aktivitätskonzentrationen der Radon-222-Zerfallsprodukte wird durch Zugabe einer bekannten Radon-222-Aktivität eingestellt. Durch kontinuierliche Nachdosierung von Radon-222 werden nach Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes

konstante Aktivitätskonzentrationen der Radon-222-Zerfallsprodukte in der Atmosphäre erzielt.

Im Bundesamt für Strahlenschutz werden die Kalibrierungen in Referenzatmosphären durchgeführt, die in einer Edelstahlkammer mit einem Volumen von ca. 36 m³ hergestellt werden. Der Referenzwert der Messgröße PAEK der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte in Luft ist die Summe der Werte der PAEK für den an Aerosolpartikeln angelagerten Anteil der Zerfallsprodukte und für den nicht an Aerosolpartikeln angelagerten Anteil (freier Anteil). Um beide Anteile zu ermitteln, wird ein Schwebstofffilter mit vorgeschaltetem Drahtsieb (200 mesh) bei bekanntem Volumenstrom beaufschlagt. Durch diese Probeentnahmeeinrichtung wird der an Aerosolpartikeln angelagerte Anteil der Zerfallsprodukte auf dem Schwebstofffilter und der freie Anteil auf dem Drahtsieb abgeschieden. Der Aerosolpartikeldurchmesser (Cut-Off-Durchmesser) zur Trennung von freiem und angelagertem Anteil beträgt bei den während der Kalibrierung verwendeten Ansaugbedingungen ca. 5 nm.

Nach der Beaufschlagung wird der zeitliche Verlauf der Aktivität für die auf dem Filter und auf dem Drahtsieb abgeschiedenen Zerfallsprodukte alphaspektrometrisch bestimmt. Aus den Messwerten wird anschließend sowohl die PAEK des an Aerosolpartikeln angelagerten Anteils der kurzlebigen Zerfallsprodukte als auch die PAEK des freien Anteils der kurzlebigen Zerfallsprodukte in der Referenzatmosphäre berechnet. Die Kalibrierung der Alphaspektrometer ist auf das nationale Normal zurückgeführt (3).

Der Kalibrierfaktor ist das Verhältnis des Referenzwertes der PAEK der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte und des Anzeigewertes des zu kalibrierenden Messgerätes während der Kalibriermessung. Die Maßeinheit des Kalibrierfaktors ist abhängig von der Messgeräteart und dem Messverfahren. Die relative Standardabweichung des Kalibrierfaktors bei der Kalibrierung eines Messgerätes im Kalibrierlaboratorium des BfS beträgt 8 % (3).

Um den Einfluss des nicht an Aerosolpartikeln angelagerten Anteils der Radon-222-Zerfallsprodukte (freier Anteil) auf den Messwert des zu kalibrierenden Messgerätes festzustellen, werden unterschiedliche Referenzbedingungen durch Einstellung verschiedener Aerosolpartikelkonzentrationen realisiert. Dadurch ist es möglich, das Verhältnis von an Aerosolpartikeln angelagerten und freien Anteilen zu variieren.

Zusätzlich zu den Messwerten der Kalibriergrößen werden während der Kalibrierung

- die Konzentration der Aerosolpartikeln,
- der auf die PAEK der kurzlebigen Zerfallsprodukte bezogene freie Anteil,
- der Gleichgewichtsfaktor,
- die Temperatur,
- die Luftfeuchtigkeit und
- der Luftdruck

kontinuierlich gemessen und die Messwerte aufgezeichnet.

Sofern Messeinrichtungen mit verschiedenen Einzelkomponenten (z. B. Probeentnahmeeinrichtung mit separater Anzeigeeinheit) verwendet werden, ist der Kalibrierfaktor nur für die bei der Kalibrierung verwendete Gerätekonfiguration gültig.

Die Kalibrierung ist im Abstand von zwei Jahren zu wiederholen. Bei Wechsel des Detektors oder bei Vorkommnissen, die zu einer Beeinflussung der Kalibrierdaten führen können, ist eine Nachkalibrierung des Messgerätes erforderlich.

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

5.1.1 Kontinuierliche Messverfahren

Aus den Messungen der Aktivitäten der einzelnen Zerfallsprodukte auf dem Schwebstofffilter wird die PAEK der kurzlebigen Zerfallsprodukte von Rn-222 in der Luft berechnet und angezeigt. In der Regel werden die Messdaten auch elektronisch aufgezeichnet. Auf die Angabe von Berechnungsgleichungen wird hier verzichtet.

5.1.2 Diskontinuierliches Messverfahren nach MARKOV

Das von MARKOV entwickelte Verfahren basiert auf der vereinfachten Annahme, dass sich in den ersten 10 Minuten nach dem Ende der Beaufschlagung, die Zunahme der Aktivität von Pb-214 und die Abnahme der Aktivität von Bi-214 auf dem Schwebstofffilter kompensieren. Durch Untersuchungen in Atmosphären mit unterschiedlichen Aktivitätskonzentrationen der kurzlebigen Zerfallsprodukte hat MARKOV nachgewiesen, dass für den in der Abbildung 1 dargestellten Messzyklus die PAEK innerhalb bestimmter Fehlergrenzen proportional zur Gesamt-Alphaimpulsanzahl N ist und mit der empirisch gefundenen Gleichung (1) berechnet werden kann:

$$c_p = e_M \cdot \frac{N}{\varepsilon \cdot \eta_y \cdot \dot{V}} \quad (1)$$

In Gleichung (1) bedeuten:

c_p PAEK in $\mu\text{J}\cdot\text{m}^{-3}$;

N Gesamt-Alphaimpulszahl im Zählintervall;

ε Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors;

η_y Abscheidegrad des Schwebstofffilters;

\dot{V} Volumenstrom in $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$;

e_M Empirisch ermittelter Faktor nach MARKOV (Markovfaktor):

$$e_M = 1,07 \cdot 10^{-7} \mu\text{J}\cdot\text{s}^{-1}.$$

Bei diesen Messungen ist der Nulleffekt vernachlässigbar. In der Praxis müssen die Korrekturfaktoren für die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors und den Abscheidegrad des Schwebstofffilters nicht einzeln bestimmt werden, sondern können mit dem Markovfaktor zu einem Faktor zusammengefasst werden, der durch eine Kalibrierung bestimmt wird:

$$\kappa = \frac{e_M}{\varepsilon \cdot \eta_y} \quad (2)$$

Neben den bereits definierten Symbolen bedeutet:

κ Kalibrierfaktor in $\mu\text{J}\cdot\text{s}^{-1}$.

Damit folgt aus Gleichung (1):

$$c_p = \kappa \cdot \frac{N}{\dot{V}} \quad (3)$$

Bei den in der Praxis vorkommenden Aktivitätskonzentrationen der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte in der Luft sind bei diesem Messverfahren die systematischen Messunsicherheiten kleiner als 15 %.

Aus Gleichung (3) folgt zusammen mit der systematischen Messunsicherheit des Messverfahrens nach MARKOV die relative Standardabweichung:

$$\frac{s(c_p)}{c_p} = \sqrt{\left(\frac{s(\kappa)}{\kappa}\right)^2 + \frac{1}{N} + \left(\frac{s(\dot{V})}{\dot{V}}\right)^2 + (0,15)^2} \quad (4)$$

5.2 Rechenbeispiel

Bei der Durchführung der Messung nach MARKOV ergeben sich folgende Daten:

$$N = 125;$$

$$\kappa = 5,03 \cdot 10^{-7} \text{ } \mu\text{J} \cdot \text{s}^{-1};$$

$$\dot{V} = 0,33 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1};$$

$$\frac{\Delta \kappa}{\kappa} = 0,08;$$

$$\frac{\Delta \dot{V}}{\dot{V}} = 0,03.$$

Die PAEK der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte beträgt nach Gleichung (3):

$$c_p = 5,03 \cdot 10^{-7} \cdot \frac{125}{0,33 \cdot 10^{-4}} \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} = 1,9 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$$

Mit den obigen Werten folgt für die relative Standardmessunsicherheit der PAEK nach Gleichung (4):

$$\frac{s(c_p)}{c_p} = \sqrt{(0,08)^2 + \frac{1}{125} + (0,03)^2 + (0,15)^2} = 0,19$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Die Messunsicherheit resultiert aus der Unsicherheit des Kalibrierfaktors, des Volumenstromes und der Impulszählung. Bei der Probeentnahme können durch extreme klimatische Bedingungen, wie z. B. Feuchtigkeit und Temperatur, als auch durch Staub und Schmutz zusätzliche Messunsicherheiten auftreten.

Zusätzliche systematische Messunsicherheiten treten auch dann auf, wenn die zu untersuchende Luft andere Radionuklide als die kurzlebigen Radon-222-Zerfalls-

produkte enthält. Andere Radionuklide können sowohl langlebige Alphastrahler der Uran oder Thoriumzerfallsreihe sein, die insbesondere bei bergbaulichen Tätigkeiten vorkommen können, als auch kurzlebige Radon-220-Zerfallsprodukte (kurzlebige Zerfallsprodukte des Thorons). In der Bundesrepublik Deutschland spielt die Strahlenexposition durch Rn-220 jedoch eine untergeordnete Rolle, so dass die durch diese Radionuklide verursachte Messunsicherheit vernachlässigt werden kann.

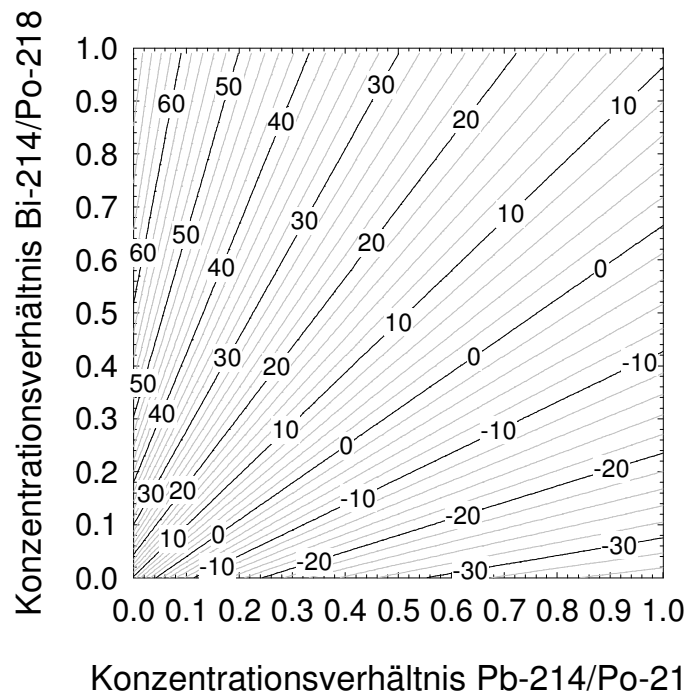


Abb. 2: Systematische Messunsicherheiten des Messabweichung nach MARKOV in Prozent

Das Messverfahren nach MARKOV besitzt in Abhängigkeit von den Konzentrationsverhältnissen der Radon-222-Zerfallsprodukte in der Luft zusätzliche systematische Messunsicherheiten. In der Abbildung 2 sind die systematischen Messabweichungen des Verfahrens nach MARKOV in Abhängigkeit von den Verhältnissen der Aktivitätskonzentration der Zerfallsprodukte in der Luft angegeben. In realen Atmosphären treten jedoch nicht alle möglichen Konzentrationsverhältnisse der Radon-222-Zerfallsprodukte auf. Für Konzentrationsverhältnisse, die im Freien oder in Arbeits- und Wohnräumen vorliegen, ist die maximale systematische Messunsicherheit des Messverfahrens nach MARKOV kleiner als 15 %.

In der Fehlerbetrachtung nicht berücksichtigt sind Messunsicherheiten infolge der Selbstabsorption der emittierten Alphateilchen in der auf dem Schwebstofffilter abgelagerten Staubschicht. Bei kurzen Probeentnahmezeiten, wie bei den hier beschriebenen Verfahren, und bei Verwendung von Membranfiltern können die auftretenden Messunsicherheiten durch Selbstabsorption vernachlässigt werden.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Nachweisgrenze der PAEK hängt in entscheidendem Maße vom Volumenstrom ab. Bei kontinuierlich messenden Geräten ist die Nachweisgrenze der PAEK der Messgerätedokumentation zu entnehmen.

Beim Messverfahren nach MARKOV wird die Nachweisgrenze der PAEK mit Gleichung (5) berechnet:

$$g = \frac{K}{V} \cdot (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta})^2 \quad (5)$$

Neben den bereits definierten Symbolen bedeuten:

g Nachweisgrenze der PAEK in $\mu\text{J} \cdot \text{m}^{-3}$;

$k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}$ Quantile der Standardnormalverteilung zur Berücksichtigung der Fehler 1. und 2. Art.

6.2 Rechenbeispiel

Der Wert der Nachweisgrenze der PAEK beträgt für das obige Beispiel mit den Quantilwerten $k_{1-\alpha} = 3$ und $k_{1-\beta} = 1,645$:

$$g = \frac{5,03 \cdot 10^{-7}}{0,33 \cdot 10^{-4}} \cdot (3 + 1,645)^2 \mu\text{J} \cdot \text{m}^{-3} = 0,33 \mu\text{J} \cdot \text{m}^{-3}$$

Durch Erhöhung des Volumenstromes kann die Nachweisgrenze deutlich verringert werden.

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Es sind keine Chemikalien notwendig.

7.2 Geräte

- Messgerät für die Bestimmung der potenziellen Alpha-Energiekonzentration der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte in der Luft einschließlich Probeentnahme- und Luftfördereinrichtung;
- Membranfilter (z. B. aus Zellulosenitrat mit einer Porengröße von $0,8 \mu\text{m}$).

Literatur

- (1) Norm DIN IEC 61577 Teil 3 Messgeräte für Radon und Radonfolgeprodukte; Besondere Anforderungen an Messgeräte für Radonfolgeprodukte. 2003-01
- (2) C. Feddersen, E. Dagen: Berechnung der Konzentration von Radon-Folgeprodukten in Luft. Staatliches Amt für Atomsicherheit und Strahlenschutz, Report SAAS-257, 1980
- (3) Qualitätsmanagementhandbuch des Kalibrierlaboratoriums für die Messgrößen potenzielle Alpha-Energiekonzentration der kurzlebigen Radon-222-Zerfallsprodukte und Radon-222-Aktivitätskonzentration. Bundesamt für Strahlenschutz, Fachgebiet SW1.1
- (4) Überwachung von Strahlenexpositionen bei Arbeiten, Leitfaden für die Umsetzung der Regelungen nach Teil 3 Kapitel 1 und 2 StrlSchV. Bundesamt für Strahlenschutz, 2005
- (5) Rühle H.: Radon, Verschiedene Einheiten für den Gehalt in Luft und Wasser sowie für die Strahlenexposition – Aktuelle Daten. RADIZ-Information Nummer 23/2004