

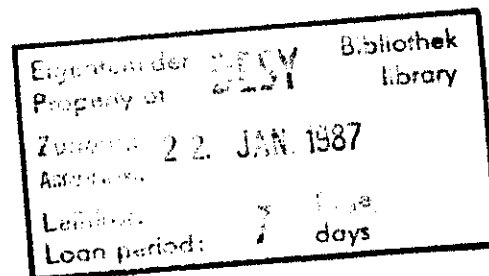
Interner Bericht

DESY D3-60

Dezember 1986

Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen
von Radon und seinen Folgeprodukten in Luft.

B. Racky



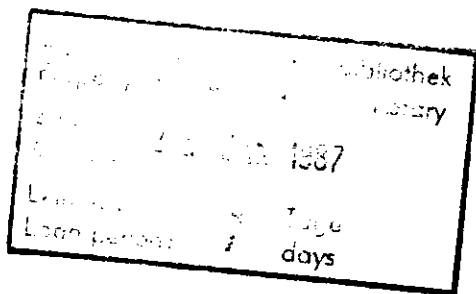
DESY behält sich alle Rechte für den Fall der Schutzrechtserteilung und für die wirtschaftliche Verwertung der in diesem Bericht enthaltenen Informationen vor.

DESY reserves all rights for commercial use of information included in this report, especially in case of filing application for or grant of patents.

**“Die Verantwortung für den Inhalt dieses
Internen Berichtes liegt ausschließlich beim Verfasser“**

Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen
von Radon und seinen Folgeprodukten in Luft.

B. Racky



Summary:

In order to measure the specific activities of Radon isotopes and their daughters in air, an air-sampler was used to collect airdust on a filter. The α - and β -activities of the filtersamples were detected with a proportional counter in a low-level-arrangement. It is shown that it is possible to distinguish between the Rn-220- and Rn-222-daughters by choosing suitable collecting- and decay-times. Results are given for typical meteorological conditions.

Inhalt:

1. Einleitung
2. Natürliche Radioaktivität der Luft
3. Bestimmung der Luftaktivität aus filtrierten Aerosolen
 - 3.1 Meßprinzip
 - 3.2 Erfassung der Rn-222-Folgeprodukte (U-Ra-Reihe)
 - 3.3 Erfassung der Rn-220-Folgeprodukte (Th-Reihe)
 - 3.4 Überlagerung der Th-Reihe durch die U-Ra-Reihe
 - 3.5 Überlagerung der U-Ra-Reihe durch die Th-Reihe
4. Messungen
 - 4.1 Meßgeräte
 - 4.2 Ergebnisse
 - 4.2.1 Luftaktivität durch Rn-220
 - 4.2.2 Luftaktivität durch Rn-222

1. Einleitung

Der Nachweis von erhöhter künstlicher Radioaktivität in der Luft, wie er nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl vielerorts versucht wurde, bereitet oft Schwierigkeiten, wenn vorher keine routinemäßige Luftüberwachung stattgefunden hat.

Radioaktive Partikel lagern sich größtenteils an Aerosole an und können daher mit Hilfe von Aerosoleammlern über geeignete Filter erfaßt werden. Diese Art der Probenahme wird besonders für gelegentliche Überprüfungen der Luftradioaktivität eingesetzt, wobei die auf dem Filter abgeschiedene Aktivität mit herkömmlichen Labormethoden quantitativ bestimmt werden kann.

Besonders geeignet zur Identifizierung der einzelnen Nuklide ist die Gamma-Spektroskopie; wegen ihrer geringen Empfindlichkeit ist sie jedoch nur bei relativ hohen Aktivitätskonzentrationen in der Luft anwendbar. Wesentlich empfindlicher und schneller ist die Bestimmung der Gesamt- α - und Gesamt- β -Aktivität mit Hilfe von Großflächenzählrohren. Hierzu muß allerdings der natürliche Untergrund bekannt sein, der durch die α - und β -Strahler aus den Uran- und Thorium-Zerfallsreihen gegeben ist.

In diesem Bericht wird gezeigt, wie mit einem einfachen Aerosolsammler und einer Low-Level-Anlage mit Großflächenzähler zur Messung der Filteraktivität die Konzentration radioaktiver Nuklide aus den Zerfallsreihen in Luft näherungsweise bestimmt werden kann. Einige Konzentrationswerte für typische Wetterlagen werden angegeben. Damit kann eine etwaige Erhöhung der Luftaktivität durch künstliche Radioaktivität besser beurteilt werden.

2. Natürliche Radioaktivität der Luft

Es gibt im wesentlichen zwei natürliche Wege, auf denen radioaktive Substanzen in die Luft gelangen. Einerseits verursacht die kosmische Strahlung in den oberen Schichten der Erdatmosphäre Kernzertrümmerungen und Kernreaktionen, bei denen radioaktive Nuklide entstehen. Unter den vielen Reaktionsprodukten sind die langlebigen Betastrahler C-14 und H-3 die häufigsten.

Andererseits gibt es in der Erdkruste drei radioaktive Urnuklide mit Zerfallsreihen, die Th-Reihe, die U-Ra-Reihe und die Ac-Reihe, in denen jeweils ein Isotop des Edelgases Radon vorkommt. Da Radon chemisch inert ist, kann es relativ leicht durch Bodenkapillare und Erdspalten in die Luft diffundieren. Die weiteren, nicht gasförmigen Folgeprodukte lagern sich als Schwermetalle fast vollständig an Aerosole an [1] und tragen so zur Luftaktivität bei.

In der bodennahen Atmosphäre ist die Aktivität aus den natürlichen Zerfallsreihen wesentlich höher als die der Höhenstrahlungsprodukte. Sie ist abhängig von den geologischen Verhältnissen, der Bodenbeschaffenheit und von der Wetterlage, und somit großen örtlichen und zeitlichen Schwankungen unterlegen.

In den Abbildungen 1 und 2 sind die Mitglieder der Th- und U-Ra-Reihe nach dem Radon aufgeführt. Die Ac-Reihe wird hier nicht betrachtet, weil dessen Mutternuklid U-235 gegenüber dem U-238 der U-Ra-Reihe nur einen kleinen Anteil im natürlichen Isotopengemisch (0,7%) hat, und somit ihr Beitrag zur Luftaktivität vernachlässigt werden kann.

Aufgrund der sehr kurzen Halbwertszeit des Rn-220 hängt dessen Aktivität vor allem von der lokalen Emission ab, während das längerlebige Rn-222 besonders bei instabilen Wetterlagen über größere Entfernungen transportiert werden kann.

Für die Gesamt-Radon-Aktivitätskonzentration wird ein Mittelwert von 3 Bq/m^3 angegeben. Dabei sind Schwankungen zwischen 0,1 und 10 Bq/m^3 möglich [2].

3. Bestimmung der Luftaktivität aus filtrierten Aerosolen

Eine direkte Messung der Luftaktivität ist mit empfindlichen Ionisationskammern möglich, in denen die Luft selbst als Zählgas verwendet wird [3, 4]. Zur Erfassung sehr niedriger Aktivitäten ist es jedoch günstiger, die Aerosole vor der Messung anzureichern. Das kann geschehen mit Hilfe von elektrostatischen Staubabscheidern oder durch das Ansaugen der Luft über ein Filter [5]. Es können dann Gammapektrometer, Durchflußzählrohre oder auch Kontaminations-

meßgeräte zur Messung eingesetzt werden.

Im folgenden wird nun gezeigt, wie mit Hilfe einer Gebläse/Filter-Anordnung und einem Proportionalzählrohr grob die absolute Luft-radioaktivität bestimmt werden kann.

3.1 Meßprinzip

Bei der Akkumulierung von radioaktiven Substanzen, z.B. auf einem Filter, wird der zeitliche Verlauf der Aktivität eines einzelnen Nuklids durch eine e-Funktion beschrieben. Es wird nach ca. 6 Halbwertszeiten eine Sättigung erreicht, deren Höhe außer von der gesuchten ursprünglichen Konzentration des Nuklids auch von Apparatekonstanten, wie hier dem Luftdurchsatz, abhängt.

Durch geeignete Wahl der Sammelzeit und der Abklingzeit bis zur Messung ist es möglich, in einem Nuklidgemisch mit unterschiedlichen Halbwertszeiten die Aktivität eines Nuklids bei der Messung zu optimieren. Für Nuklide, die genetisch miteinander verknüpft sind, wie das bei der natürlichen Luftradioaktivität der Fall ist, müssen die Umwandlungsmechanismen berücksichtigt werden.

Das gasförmige Radon wird nicht auf Filterpapier zurückgehalten. Somit kann die spezifische Luftaktivität nur aus den abgeschiedenen Folgeprodukten bestimmt werden. Neben den Bildungs- und Zerfallsmechanismen auf dem Filter muß dazu auch bekannt sein, in welchen Aktivitätsverhältnissen Rn-220 und Rn-222 zu seinen Folgeprodukten in der Luft vorliegt.

Diese Verhältnisse sind gegeben durch die Halbwertszeiten und meteorologische Parameter. Ein turbulenzabhängiges Vertikalprofil der relativen Aktivitäten kann durch ein System von Differentialgleichungen beschrieben werden [6], das jedoch nicht allgemein lösbar ist. Unter einigen Annahmen und Vereinfachungen wurden in [6] mit numerischen Verfahren für unterschiedlich turbulente Luftbewegung in verschiedenen Abständen vom Boden Anreicherungsgrade der Rn-Zerfallsprodukte relativ zum Mutternuklid bestimmt. In der Tabelle 1 sind als Beispiel einige Werte für einen Abstand von 1 m über dem Boden wiedergegeben.

Tabelle 1

Verhältnis k der spezifischen Aktivität eines Zerfallsproduktes zu der des Mutternuklids Rn-222 bzw. Rn-220 in 1 m Höhe über dem Boden [6]

Zerfalls-Reihe	Nuklid	k	
		schwache Turbulenz	starke Turbulenz
U-Ra	Po-218	0.85	0.93
	Pb-214	0.54	0.85
	Bi-214	0.45	0.82
	Po-214	0.45	0.82
Th	Pb-212	0.02	0.013
	Bi-212	0.01	0.012

Da diese Werte ohnehin sehr fehlerbehaftet sind, wird hier vereinfachend angenommen:

Rn-222-Folgeprodukte: k = 0.7

Rn-220-Folgeprodukte: k = 0.01

Mit Hilfe dieser Faktoren kann prinzipiell aus einer einzigen geeigneten Filter-Aktivitätsmessung pro Reihe die jeweilige spezifische Radon-Konzentration berechnet werden, wenn bekannt ist, wie sich die Aktivitätsverhältnisse auf dem Filter in Abhängigkeit von Ansaug- und Wartezeiten ändern. Unter der Voraussetzung, daß die Nuklide in den Aktivitätsverhältnissen, in denen sie in der Luft vorliegen, zeitlich konstant bei einem Filterabscheidungsgrad von 100% (bzw. 0% für Radon) angesaugt werden, ergibt sich die Zahl der Atome des Nuklids i auf dem Filter (N_{if}) aus der Differentialgleichung:

$$[1] \quad \frac{dN_{if}}{dt_A} = \lambda_{i-1} \cdot N_{(i-1)F}(t_A) - \lambda_i N_{if}(t_A)$$

Dabei gibt der Index i die Stellung des Nuklids innerhalb der Zerfallsreihe an.

$$i = 1 : \text{Rn-220 bzw. Rn-222}$$

Außerdem ist:

- N_{iL} : Konzentration der Atome des Nuklids i in der angesaugten Luft
- λ_i : Zerfallskonstante
- t_A : Ansaugzeit
- L : Luftdurchsatz durch das Filter

Für das Abklingen des Nuklids i auf dem Filter nach dem Ansaugende gilt:

$$[2] \quad \frac{dN_{iF}}{dt_w} = \lambda_{i-1} \cdot N_{(i-1)F}(t_w) - \lambda_i N_{iF}(t_w)$$

t_w : Warte- bzw. Abklingzeit

Aus der Lösung beider Gleichungen kann die Aktivität des Nuklids i nach der Ansaugzeit t_A und der Abklingzeit t_w angegeben werden; hier in der allgemeinen Form:

$$[3] \quad A_{iF}(t_A, t_w) = L \cdot A_{Rn} \sum_{j=2}^i C_{ij}^*(t_w) \cdot \left(\sum_{k=2}^j C_{jk}(t_A) \cdot k_k \right)$$

mit:

- k_k : Anreicherungsgrad des Nuklids k in der Luft relativ zum Radon
- A_{Rn} : Aktivitätskonzentration des Mutternuklids, also A_{Rn-220} oder A_{Rn-222} in der Luft
- $C_{jk}(t_A)$: Funktion, die den zeitlichen Verlauf der Aktivität des Nuklids j infolge der Filtrierung des Nuklids k während der Sammelzeit beschreibt.
- $C_{ij}^*(t_w)$: Funktion, die den zeitlichen Verlauf der Filteraktivität des Nuklids i infolge des Zerfalls vom Nuklid j nach dem Ansaugende beschreibt.

Da das gasförmige Radon nicht auf einem Filter zurückgehalten wird, ist:

$$A_{1F}(t_A, t_w) = 0$$

Die Funktionen C_{ij}^* und C_{jk} ergeben sich aus der Lösung der Differentialgleichungen [1] und [2]. Für drei Nuklide erhält man [7]:

Anstiegsfunktionen:

$$[4] \quad C_{22}(t_A) = \frac{1 - e^{-\lambda_2 t_A}}{\lambda_2}$$

$$[5] \quad C_{32}(t_A) = \left[\frac{1 - e^{-\lambda_3 t_A}}{\lambda_3} - \frac{e^{-\lambda_3 t_A} - e^{-\lambda_2 t_A}}{\lambda_2 - \lambda_3} \right] \cdot \frac{\lambda_3}{\lambda_2}$$

$$[6] \quad C_{33}(t_A) = \frac{1 - e^{-\lambda_3 t_A}}{\lambda_3}$$

$$[7] \quad C_{42}(t_A) = \left[\frac{1 - e^{-\lambda_4 t_A}}{\lambda_4} - \frac{e^{-\lambda_3 t_A} - e^{-\lambda_4 t_A}}{\lambda_4 - \lambda_3} - \frac{3(e^{-\lambda_3 t_A} - e^{-\lambda_4 t_A})}{(\lambda_4 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} + \frac{\lambda_3(e^{-\lambda_4 t_A} - e^{-\lambda_2 t_A})}{(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right] \cdot \frac{\lambda_4}{\lambda_2}$$

$$[8] \quad C_{43}(t_A) = \left[\frac{1 - e^{-\lambda_4 t_A}}{\lambda_4} - \frac{e^{-\lambda_3 t_A} - e^{-\lambda_4 t_A}}{\lambda_4 - \lambda_3} \right] \cdot \frac{\lambda_4}{\lambda_3}$$

$$[9] \quad C_{44}(t_A) = \frac{1 - e^{-\lambda_4 t_A}}{\lambda_4}$$

Abfallfunktionen:

$$[10] \quad C_{22}^*(t_w) = e^{-\lambda_2 t_w}$$

$$[11] \quad C_{32}^*(t_w) = \frac{\lambda_2(e^{-\lambda_3 t_w} - e^{-\lambda_2 t_w})}{\lambda_2 - \lambda_3} \cdot \frac{\lambda_3}{\lambda_2}$$

$$[12] C_{33}^*(t_w) = e^{-\lambda_3 t_w}$$

$$[13] C_{42}^*(t_w) = \left[\frac{\lambda_2 \cdot \lambda_3 (e^{-\lambda_3 t_w} - e^{-\lambda_4 t_w})}{(\lambda_4 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3)} - \frac{\lambda_2 \cdot \lambda_3 (e^{-\lambda_4 t_w} - e^{-\lambda_2 t_w})}{(\lambda_2 - \lambda_4) (\lambda_2 - \lambda_3)} \right] \cdot \frac{\lambda_4}{\lambda_2}$$

$$[14] C_{43}^*(t_w) = \frac{\lambda_3 (e^{-\lambda_3 t_w} - e^{-\lambda_4 t_w})}{\lambda_4 - \lambda_3} \cdot \frac{\lambda_4}{\lambda_3}$$

$$[15] C_{44}^*(t_w) = e^{-\lambda_4 t_w}$$

Die Funktionen $C(t_A)$ und $C^*(t_w)$ sind für die Folgeprodukte des Rn-220 und Rn-222 in den Abbildungen 3 - 6 graphisch dargestellt (übereinstimmend mit [6]).

3.2 Erfassung der Rn-222-Folgeprodukte (U-Ra-Reihe)

Die ersten vier Tochternuklide des Rn-222 haben relativ kurze Halbwertszeiten:

Po-218	: 3.05 min	(α)
Pb-214	: 26.8 min	(β)
Bi-214	: 19.8 min	(β)
Po-214	: 162 μ s	(α),

während das darauf folgende Pb-210 mit 22 a ebenso wie die restlichen Reihenmitglieder eine sehr lange Halbwertszeit hat und hier als stabil angesehen wird. Es ist also sinnvoll, Sammel- und Abklingzeiten so zu wählen, daß die kurzlebigen Nuklide dominieren. Allerdings sollte die 3 min-Aktivität des Po-218 auf dem Filter möglichst klein sein, damit Ungenauigkeiten bei der Wartezeit nicht zu großen Fehlern führen und starke Zählratenänderungen während der Meßzeit vermieden werden. Empfehlenswert ist eine Ansaugzeit von ca. 1 h mit anschließender Wartezeit von 20 min. Von den beiden α -Strahlern, die in der Ansaugzeit akkumuliert wurden, ist dann nur noch Po-214, das sich mit Bi-214 in radioaktiven Gleichgewicht befindet, meßbar.

Die β -Strahler Pb-214 und Bi-214 sind nach den vorgeschlagenen Zeiten ebenfalls gut nachweisbar.

Um die Verhältnisse zu ermitteln, in denen die Aktivitäten der Nuklide auf dem Filter zueinander und zur Rn-222-Aktivität der Luft stehen, ist Gl. [3] für Po-218 ($i=2$), Pb-214 ($i=3$) und Bi-214 ($i=4$) aufzustellen.

$$[16] A_{iF}(t_A, t_w) = L \cdot A_{Rn-222} \cdot k_{222} \cdot f_i(t_A, t_w)$$

mit:

$$[17] f_2(t_A, t_w) = C_{22} \cdot C_{22}^*$$

$$[18] f_3(t_A, t_w) = C_{22} \cdot C_{32}^* + (C_{32} + C_{33}) \cdot C_{33}^*$$

$$[19] f_4(t_A, t_w) = C_{22} \cdot C_{42}^* + (C_{32} + C_{33}) \cdot C_{43}^* + (C_{42} + C_{43} + C_{44}) \cdot C_{44}^*$$

$$[20] f_5(t_A, t_w) = f_4(t_A, t_w)$$

Die Funktionen $C(t_A)$ und $C^*(t_w)$ sind den Abbildungen [3] und [4] oder den Gleichungen [4] - [15] zu entnehmen.

Die gesamte Filteraktivität ist:

$$[21] A_{Fges} = L \cdot A_{Rn-222} \cdot k_{222} \cdot \sum_{i=2}^5 f_i(t_A, t_w)$$

α -Aktivität:

$$[22] A_{F\alpha} = L \cdot A_{Rn-222} \cdot k_{222} \cdot (f_2(t_A, t_w) + f_5(t_A, t_w))$$

β -Aktivität:

$$[23] A_{F\beta} = L \cdot A_{Rn-222} \cdot k_{222} \cdot (f_3(t_A, t_w) + f_4(t_A, t_w))$$

Es genügt also eine α - oder β -Messung zur Bestimmung der spezifischen Aktivität von Rn-222 sowie dessen Folgeprodukten, wenn die k-Werte bekannt sind. Zur Überprüfung der Ergebnisse ist es vorteilhaft, beide Messungen zu vergleichen. Das Verhältnis von β - zu α -Aktivität muß sein:

$$[24] \quad \frac{A_{\beta}}{A_{\alpha}} = \frac{f_3(t_A, t_w) + f_4(t_A, t_w)}{f_2(t_A, t_w) + f_5(t_A, t_w)}$$

Der zeitliche Verlauf der Filteraktivitäten während einer Ansaugzeit von 1 h und anschließender Abklingzeit von 20 min ist in Abbildung 5 dargestellt.

Die Werte der Zeitfunktionen $f(t_A, t_w)$, die sich für die vorgeschlagenen Ansaug- und Wartezeiten ergeben, sind in Tabelle 2 aufgeführt.

Tab. 2 $f_i(1h, 20min)$ für die Rn-222-Folgeprodukte

i	Nuklid	$f_i(1h, 20min)$ [h]	Zerfall
2	Po-218	0.0008	α
3	Pb-212	0.3415	β^-
4	Bi-214	0.6226	β^-
5	Po-214	0.6226	α

Daraus ist zu entnehmen, daß die α -Aktivität des Filters bei diesen Zeiten fast ausschließlich vom Po-214 herrührt, während die β -Aktivität zu 46% dem Pb-214 und zu 54% dem Bi-214 zuzuordnen ist. Das Verhältnis der Aktivitäten ist:

$$\frac{A_{\beta}}{A_{\alpha}} = 1.55$$

Je nach Meßgröße kann nun aus den Gl. [22] bzw. [23] die spezifische Rn-222-Aktivität der Luft bestimmt werden. Dabei ist zunächst vorausgesetzt, daß nur U-Ra-Reihenmitglieder aus der Luft angesaugt wurden.

5.3 Erfassung der Rn-220-Folgeprodukte (Th-Reihe)

Die Halbwertszeit des ersten Rn-220-Tochter-nuklids, Po-216, ist mit 0.15 s so kurz, daß es bei einer off-line-Messung von Filteraktivitäten nicht nachgewiesen werden kann. So ist es erforderlich, relativ lange Ansaugzeiten zu wählen, damit das nachfolgende Pb-212 (Halbwertszeit: 10.6 h) und dessen kürzerlebige Folgeprodukte eine ausreichende Aktivität liefern. Die Sammelzeit sollte mindestens 8 h sein. Bei der Wahl der Wartezeit ist darauf zu achten, daß mit angesaugte Rn-220-Tochter-nuklide möglichst abgeklungen sind, um eine eindeutige Zuordnung der Filteraktivität zur Th-Reihe zu ermöglichen. Dies ist nach ca. 5 h der Fall. Bei Wartezeiten von 10 h und länger stellt sich auf dem Filter ein radioaktives Gleichgewicht zwischen Pb-212 und dessen Tochter Bi-212 (Halbwertszeit: 60.6 min) ein. Bi-212 befindet sich ebenfalls mit seinen beiden sehr kurzlebigen Töchtern Tl-208 und Po-212 im Gleichgewicht, die jeweils mit einem Zerfall zum stabilen Pb-208 die Reihe beenden. Die Filteraktivitäten nach einer Ansaugzeit von 8 h und einer Wartezeit von 10 h stammen also nur aus dem akkumulierten Pb-212 und dessen auf dem Filter entstandenen Folgeprodukten, so daß aus einer solchen Messung die spezifische Pb-212-Aktivität der Luft auch ohne Kenntnis von Anreicherungs-faktoren bestimmt werden könnte.

Es befinden sich also folgende Nuklide auf dem Filter:

Nuklid	Halbwertszeit	Zerfall
Pb-212	10.6 h	β^-
Bi-212	60.6 min	36% α , 64% β^-
Tl-208	3.1 min	β^-
Po-212	0.3 μ s	α

Um den zeitlichen Verlauf der Filteraktivitäten infolge der Th-Reihenmitglieder zu beschreiben ist es ausreichend, die Gl. [3] für Pb-212 und Bi-212 aufzustellen. Die Summe der Tl-208 und Po-212-Aktivität ist praktisch zu jedem Zeitpunkt gleich der Bi-212-Aktivität und teilt sich entsprechend dem Verzweigungs-verhältnis auf. Die Filteraktivität des ersten Rn-220-Tochter-nuklids Po-216 ist:

$$A_{2f}(t_A, t_w) = 0$$

ansonsten gilt:

$$[26] \quad A_{if}(t_A, t_w) = L \cdot A_{Rn-220} \cdot k_{220} \cdot f_i(t_A, t_w)$$

mit:

$$f_3(t_A, t_w) = C_{33} \cdot C_{33}^*$$

$$f_4(t_A, t_w) = C_{33} \cdot C_{43}^* + (C_{43} + C_{44}) \cdot C_{44}^*$$

$$f_5(t_A, t_w) = 0.36 \cdot f_4(t_A, t_w)$$

$$f_6(t_A, t_w) = 0.64 \cdot f_4(t_A, t_w)$$

Die Funktionen C und C* sind den Gleichungen [6], [8], [9], [12], [14] und [15] oder den Abbildungen [6] und [7] zu entnehmen.

Die gesamte Filteraktivität ist:

$$A_{Fges} = L \cdot A_{Rn-220} \cdot k_{220} \sum_{i=2}^6 f_i(t_A, t_w)$$

α -Aktivität:

$$A_{F\alpha} = L \cdot A_{Rn-220} \cdot [0.36 \cdot f_4(t_A, t_w) + f_6(t_A, t_w)] \cdot k_{220}$$

$$[27] \quad A_{f\alpha} = L \cdot A_{Rn-220} \cdot k_{220} \cdot f_4(t_A, t_w)$$

β -Aktivität:

$$A_{F\beta} = L \cdot A_{Rn-220} \cdot k_{220} \cdot [0.64 \cdot f_4(t_A, t_w) + f_5(t_A, t_w) + f_3(t_A, t_w)]$$

$$[28] \quad A_{f\beta} = L \cdot A_{Rn-220} \cdot k_{220} [f_3(t_A, t_w) + f_4(t_A, t_w)]$$

Das Verhältnis von β - zu α -Aktivität ist demnach:

$$[29] \quad \frac{A_{F\beta}}{A_{F\alpha}} = \frac{f_3(t_A, t_w) + f_4(t_A, t_w)}{f_4(t_A, t_w)}$$

Abbildung 8 zeigt den Verlauf der Filteraktivitäten für eine Ansaugzeit von 8 h und anschließendem Abklingen von 10 h.

Für die vorgeschlagenen Ansaug- und Wartezeiten ergeben sich folgende Werte für $f(t_A, t_w)$:

Tab. 3 $f_i(8h, 10h)$ für Rn-220-Folgeprodukte

Nuklid	$f_i(t_A, t_w)$ [h]	Zerfall
Pb-212	3.239	α
Bi-212	3.580	α, β^-
Tl-208	1.289	β^-
Po-212	2.291	α

Wie erwartet, befinden sich die Aktivitäten von Pb-212 und Bi-212 in radioaktivem Gleichgewicht entsprechend dem Verhältnis ihrer Halbwertszeiten [8]:

$$\frac{A_F(\text{Bi-212})}{A_F(\text{Pb-212})} = \frac{10.6 \text{ h}}{10.6 \text{ h} - 1.01 \text{ h}} = 1.11$$

Das Verhältnis von β - zu α -Aktivität ist:

$$\frac{A_{F\beta}}{A_{F\alpha}} = 1.90$$

Damit kann überprüft werden, ob längerlebige künstliche β -Strahler mit angesaugt wurden.

Aus den Gleichungen [27] bzw. [28] kann mit den bekannten Zeitfunktionen $f(t_A, t_w)$ die spez. Rn-220-Aktivität der Luft aus der gemessenen α - bzw. β -Zählrate bestimmt werden.

Es ist empfehlenswert, nach ca. 3 - 4 Tagen das Filter nochmals zu vermessen, um den Untergrund durch langlebige Nuklide aus Atombomben-fallouts und natürlichen Quellen zu ermitteln.

3.4 Überlagerung der Th-Reihe durch die U-Ra-Reihe

Für die Th-Reihe wurden Sammelzeiten von mindestens 8 h vorgeschlagen und, bereits in Hinblick auf Störungen durch die U-Ra-Reihe, Wartezeiten von 10 h. Für diese Zeiten ergibt sich aus Gl. [3], daß die Folgeprodukte des Rn-222 keine meßbare Filteraktivität mehr haben können und so eine eindeutige Zuordnung zur Th-Reihe möglich ist.

3.5 Überlagerung der U-Ra-Reihe durch die Th-Reihe

Bei den Meßparametern für die Rn-222-Folgenuklide, $t_A = 1$ h, $t_w = 20$ min, wird das Bi-212 der Th-Reihe ebenfalls nachweisbar sein. Um die Größenordnung der Störung zu beurteilen, wird der Beitrag beider separat betrachteten Reihen für diese Zeiten verglichen. Dazu muß der jeweilige Anreicherungsfaktor (0.7 bzw. 0.01) berücksichtigt werden:

$$\frac{A_{iF}}{L \cdot A_{Rn}} = k \cdot f_i(t_A, t_w)$$

Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 aufgeführt.

Tab. 4

Relative Filteraktivitäten der Rn-220 bzw. Rn-222-Folgeprodukte nach $t_A = 1$ h, $t_w = 20$ min.

U-Ra-Reihe		Th-Reihe	
i	$\frac{A_{iF}}{L \cdot A_{Rn-222}}$ [h]	i	$\frac{A_{iF}}{L \cdot A_{Rn-220}}$ [h]
Po-218	$5.60 \cdot 10^{-4}$	Pb-212	$9.5 \cdot 10^{-3}$
Pb-214	0.239	Bi-212	$9.9 \cdot 10^{-3}$
Bi-214	0.436	Tl-208	$3.6 \cdot 10^{-3}$
Po-214	0.436	Po-212	$6.3 \cdot 10^{-3}$
Gesamt- β	0.675	Gesamt- β	0.019
Gesamt- α	0.436	Gesamt- α	0.0099

Wenn also die Luft-Aktivitäten von Rn-222 und Rn-220 im Verhältnis 1:1 vorliegen, entfallen von der gesamten α - oder β -Aktivität des Filters ca. 3% auf Mitglieder der Th-Reihe, so daß im Normalfall nur kleine Störungen zu erwarten sind. Die Th-Aktivität kann eindeutig aus einem Langzeitversuch bestimmt werden und zur Korrektur der U-Ra-Aktivität aus dem Kurzzeitversuch herangezogen werden. Da 2 Proben zugrunde gelegt werden, die zu verschiedenen Zeiten genommen sind, ist die Korrektur sehr fehlerbehaftet und sollte nicht zu groß sein.

4. Messungen

Die Probennahme erfolgte auf dem DESY-Gelände in einem Meter Abstand über einem Sandboden. Es wurde bei unterschiedlichen Wetterlagen versucht, nach verschiedenen Ansaug- und Wartezeiten die Rn-220 und Rn-222-Folgeprodukte nachzuweisen.

4.1 Meßgeräte

Zum Akkumulieren der Aerosole wurden Glasfaserfilter (Schleicher & Schüll, Filternummer 6) verwendet, die laut Spezifikation einen Abscheidegrad von 99.95% für Teilchen aufweisen, deren Größenverteilung bei einem Durchmesser von $0.3 \mu\text{m}$ ein Maximum hat. Für natürliche Aerosolteilchen sind Durchmesser von 0.04 bis $0.08 \mu\text{m}$ am häufigsten [1],[6], [9]. Aufgrund von Untersuchungen verschiedener Filter [10] wird angenommen, daß mehr als 95% der Aerosole auf dem Filter adsorbiert werden. Im Rahmen der erwarteten Genauigkeit kann der Filterwirkungsgrad $\eta_f = 1$ gesetzt werden.

Bei den verwendeten Filtern (Gesamtfläche: $19 \times 24 \text{ cm}^2$) hat das Gebläse zum Ansaugen der Luft einen Durchsatz von $95 \text{ m}^3/\text{h}$. Es wurden nur ~5% der gesamten Filterfläche gemessen. Als Strahlungsdetektor diente ein Argon-Durchfluß-Proportionalzähler in 2 π -Geometrie. Das Zählerfenster mit einer Massenbelegung von 0.9 g/cm^2 ist für α - und β -Strahlung durchlässig. Durch Wahl der Hochspannung ist eine α - oder ($\alpha + \beta$)-Zählratenmessung möglich. Der Meßplatz ist als Low-Level-Anlage ausgestattet; in die 10 cm starke Eisenabschirmung ist ein Zähler für Höhenstrahlung integriert, der mit dem Probensignal in Anti-Koinzidenz geschaltet ist.

Der Nulleffekt beträgt:

$$\begin{aligned} \dot{Z}_0(\alpha) &= 0.2 \text{ Imp/min} \\ \dot{Z}_0(\alpha+\beta) &= 5.4 \text{ Imp/min} \end{aligned}$$

Das Ansprechvermögen (ϵ) des Detektors ist mit radioaktiven Flächen-Standardpräparaten kalibriert; die Filterproben haben die gleichen Abmessungen wie die Präparate. Das Ansprechvermögen für alle vorkommenden α -Strahler ist

- im α -Arbeitspunkt: $\epsilon_{\alpha 1} = 0.26$
- im $(\alpha+\beta)$ -Arbeitspunkt: $\epsilon_{\alpha 2} = 0.41$

Das Ansprechvermögen für β -Strahler hängt von deren Energie ab und ist im Mittel für die Folgeprodukte von

- Rn-220: $\epsilon_{\beta} = 0.43$
- Rn-222: $\epsilon_{\beta} = 0.50$ im $(\alpha+\beta)$ -Arbeitspunkt.

4.2 Ergebnisse

Bei jeder Probe wurde mehrfach die α - und $(\alpha+\beta)$ -Zählrate gemessen. Totzeiteffekte sind wegen der niedrigen Zählraten nicht zu berücksichtigen. Die Selbstabsorption der Strahlung durch die Probe wird ebenfalls vernachlässigt. Zur Berechnung der Aktivitäten werden keine Korrekturen für Kernumwandlungen während der Meßzeit gemacht.

Die spezifische Rn-222 bzw. Rn-220-Aktivität der Luft ergibt sich bei Messung der α -Zählraten (\dot{Z}_{α}) aus den Gleichungen [22] bzw. [27]. Mit Hilfe der bekannten Zeitfunktionen, dem Luftdurchsatz und dem jeweiligen Anreicherungsfaktor wird das Verhältnis $A_{F\alpha}/A_{Rn}$ für jede Reihe ermittelt.

Auch eine Ermittlung der spezifischen Rn-Aktivität aus der $(\alpha+\beta)$ -Zählrate ist möglich, da zu jedem Zeitpunkt das Verhältnis A_{β}/A_{α} (Gl. [24], [29]) bekannt ist.

4.2.1 Luftaktivität durch Rn-220

Die Aktivität der Th-Reihenmitglieder konnte in mehreren Versuchen nach Aerosolsammelzeiten von ca. 8 h nachgewiesen werden. Bei jeder Probe wurde mehrmals nach Wartezeiten >10 h die α - und $\alpha+\beta$ -Zählrate gemessen und aus jeder Messung die spezifische Rn-220-Aktivität der Luft berechnet. Dabei ergab sich für eine

- trockene, heiße Wetterlage:

$$A_L(\text{Rn-220}) = 3.0 \text{ Bq/m}^3 \pm 25\%$$

Die Abweichungen der Ergebnisse aus verschiedenen Messungen einer Probe sind kleiner als 5%.

- kalte, stürmische Wetterlage nach Regenfällen:

$$A_L(\text{Rn-220}) = 0.5 \text{ Bq/m}^3 \pm 30\%$$

Dieser Wert ergibt sich aus den α -Messungen. Aus der $(\alpha+\beta)$ -Zählrate wurden ca. faktor 2 höhere Ergebnisse ermittelt, was vermutlich auf die Anwesenheit anderer langlebiger β -Strahler in der Luft zurückzuführen ist.

Die spezifische Luftaktivität der Rn-220-Folgeprodukte ist gemäß der Anreicherungs- und Verzweigungsfaktoren (S. 5 bzw. Abb. 1):

$$\begin{aligned} A_L(\text{Po-216}) &= A_L(\text{Rn-220}) \\ A_L(\text{Pb-212}) &= A_L(\text{Bi-212}) = 0.01 \cdot A_L(\text{Rn-220}) \\ A_L(\text{Tl-208}) &= 3.6 \cdot 10^{-3} \cdot A_L(\text{Rn-220}) \\ A_L(\text{Po-212}) &= 6.4 \cdot 10^{-3} \cdot A_L(\text{Rn-220}) \end{aligned}$$

Damit ist die gesamte Luftradioaktivität durch Rn-220 und Folgeprodukte:

$$A_L(\text{Th}) = 2.03 \cdot A_L(\text{Rn-220}),$$

also für diese Messungen je nach Wetterlage:

$$A_L(\text{Th}) \approx 1 - 6 \text{ Bq/m}^3.$$

4.2.2 Luftaktivität durch Rn-222

Die spezifische Rn-222-Aktivität der Luft wurde für verschiedene Wetterlagen bei Luftansaugzeiten von 0.5 bis 2 h bestimmt. Aus einer Probe, die bei relativ hoher Luftaktivität genommen wurde, konnte bei 2 h Sammelzeit nach langen Wartezeiten noch die Rn-220-Aktivität bestimmt werden. Die Korrektur, die demnach für eine Messung nach kurzer Wartezeit zur Bestimmung der Rn-222-Folgeprodukte angebracht werden mußte, betrug ca. 10%.

Für die übrigen Kurzzeit-Versuche wurde der Rn-222-Wert mit dem der Wetterlage entsprechenden Rn-220-Wert aus den Langzeit-Versuchen korrigiert.

Es ergaben sich folgende Aktivitäten für

- trockene, heiße Wetterlage:

$$A_L(\text{Rn-222}) \approx 1.2 \text{ Bq/m}^3 \pm 40\%$$

Ein Tages-Spitzenwert lag bei 6.4 Bq/m^3 .

- trockene, stürmische Wetterlage:

$$A_L(\text{Rn-222}) \approx 0.8 \text{ Bq/m}^3 \pm 50\%$$

- regnerische, stürmische Wetterlage:

$$A_L(\text{Rn-222}) \approx 0.13 \text{ Bq/m}^3 \pm 50\%$$

Die Aktivitätsberechnungen aus α und $\alpha+\beta$ -Zählrate liefern Differenzen bis zu 30%. Das ist vermutlich auf Ungenauigkeiten bei den Anreicherungs-faktoren zurückzuführen.

Die spezifische Luftaktivität der Rn-222-Folgeprodukte bis einschließlich Po-214 wurde mit jeweils $0.7 \cdot A(\text{Rn-222})$ angenommen. Damit ergibt sich die gesamte spezifische Luftaktivität zu

$$A_L(\text{U-Ra}) = 3.8 \cdot A_L(\text{Rn-222})$$

Je nach Wetterlage ist der Schwankungsbereich also:

$$A_L(\text{U-Ra}) \approx 0.5 - 5 \text{ Bq/m}^3,$$

kurzzeitige Spitzenwerte liegen bei 25 Bq/m^3 .

Die gefundenen Ergebnisse liegen also im Rahmen dessen, was in der Literatur angegeben wird.

Literatur

- 1) Heyder, J. : Vorkommen natürlicher Radionuklide in der bodennahen Atmosphäre, in: Aurand, K. u.a.: Die natürliche Strahlenexposition des Menschen, G. Thieme Verlag, Stuttgart 1974
- 2) Ionizing Radiation: Sources and biological effects, UNSCEAR-Report 1982
- 3) Bächmann, K., Lieser, K.H. (Hrsg.): Messung radioaktiver Nuklide, Verlag Chemie 1970
- 4) Klimek, K.P. : Messung der Konzentration radioaktiver Nuklide in der Luft am Linac II, DESY D3-74/18, 1974
- 5) Fassbender, J. (Hrsg.): Einführung in die Meßtechnik der Kernstrahlung und die Anwendung der Radioisotope, Thieme Verlag, Stuttgart, 1958
- 6) Jacobi, W. : Die natürliche Radioaktivität der Atmosphäre und ihre Bedeutung für die Strahlenbelastung des Menschen, HMI-B21, 1962
- 7) Raabe, O.G., Wrenn, E. : Analysis of the activity of Radon daughter samples by weighted least squares, Health Physics, Vol.17, 593, 1969
- 8) Evans, E.D. : The atomic nucleus, McGraw-Hill book company, 1955
- 9) Henshaw, D.L., Hobbs, M.S., Williams, C.H. and Few, A.P. : Size distribution of airborne aerosol particles with attached α -active nuclei, Solid State Nuclear Track Detektors, Conf. Bristol, 1981
- 10) Busigin, A. van der Vooren, A.W. and Phillips, C.R. : Collection of Radon daughters on filter media, Envir. Sci. Techn., Vol.14, 533, 1980

Abb. 1 Thorium-Reihe ab Rn-220

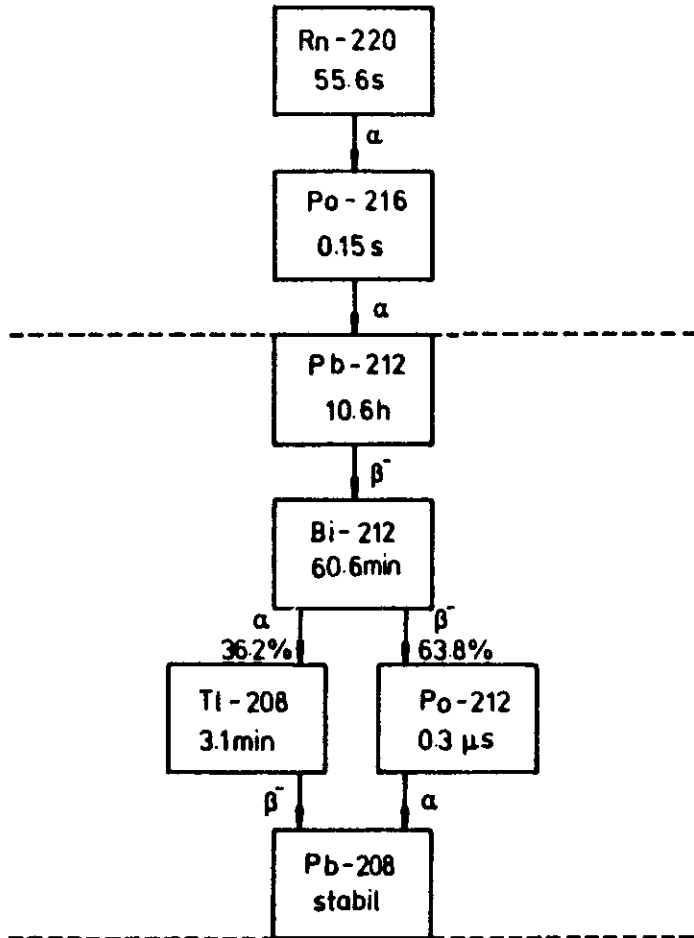


Abb. 2 Uran-Radium-Reihe ab Rn-222 (ohne Verzweigungen mit Wahrscheinlichkeiten <0.02%)

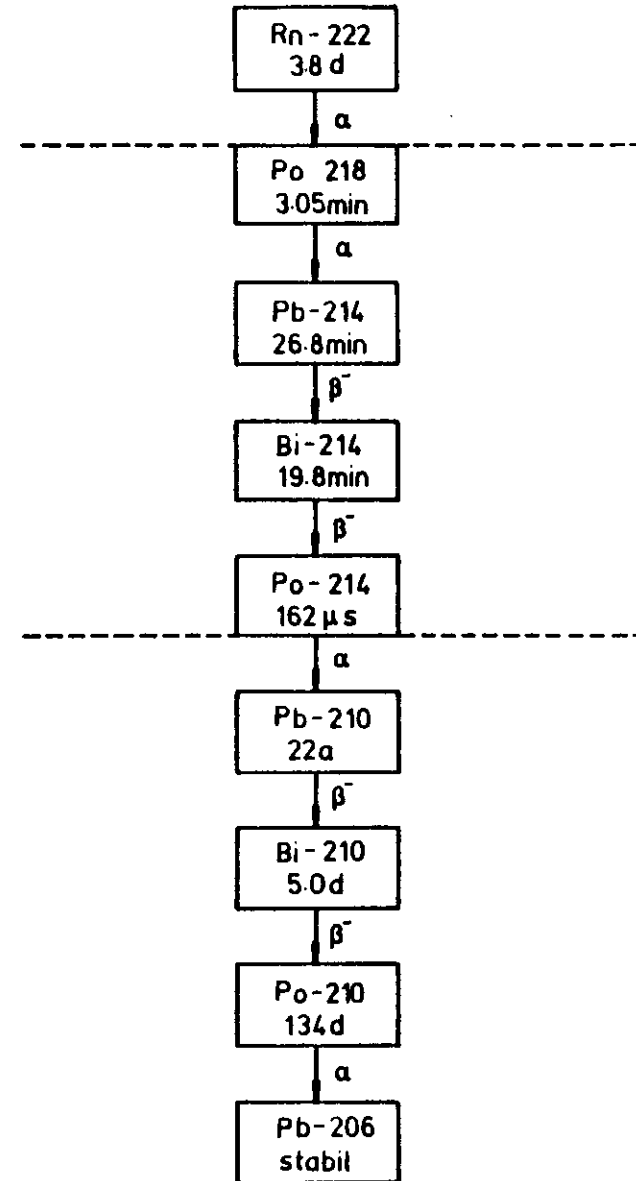


Abb. 3 Funktionen $C(t_A)$ für den Anstieg der Filteraktivität von Rn-222-Folgeprodukten in Abhängigkeit von der Ansaugzeit t_A .

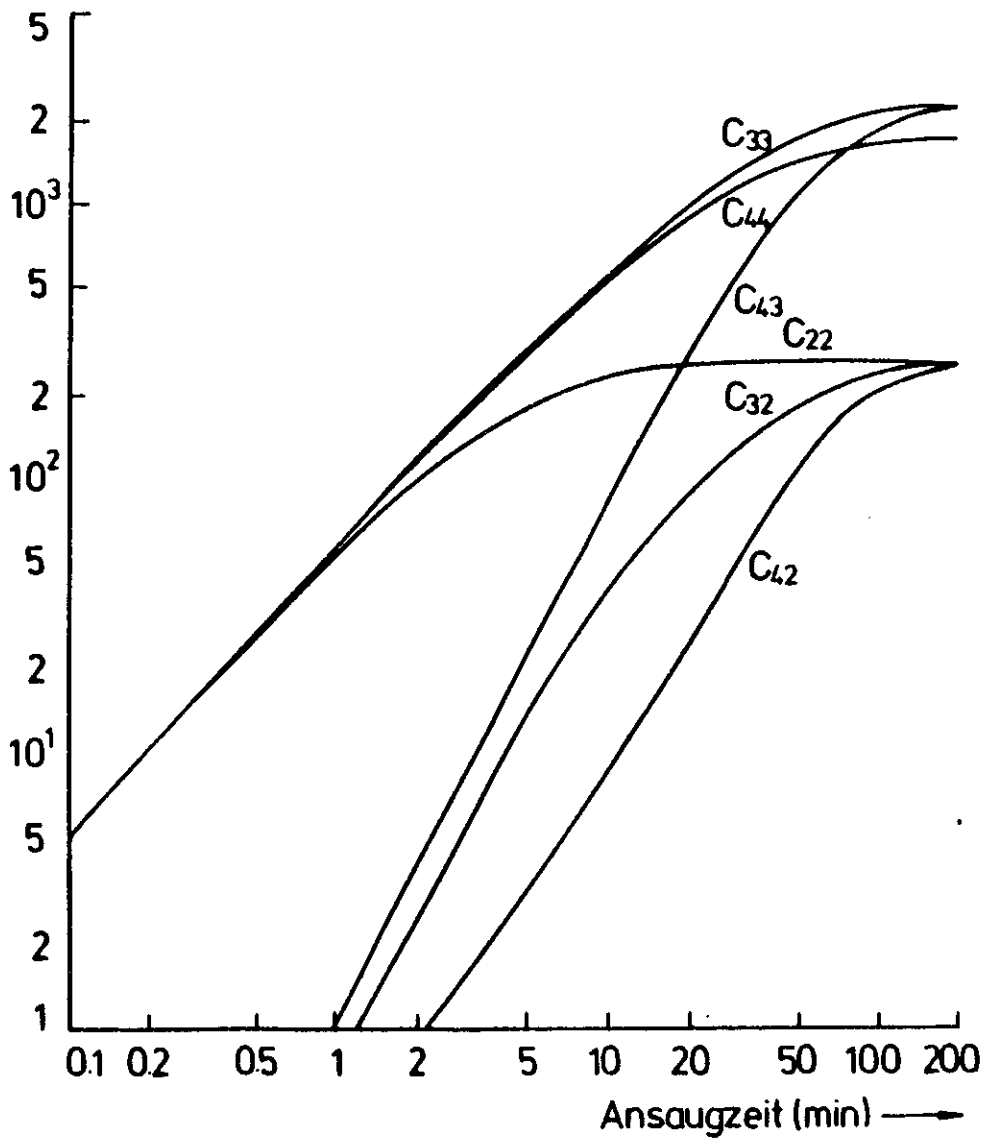


Abb. 4 Funktionen $C^*(t_w)$ für das Abklingen der Filteraktivität der Rn-222-Folgeprodukte nach dem Ansaugende.

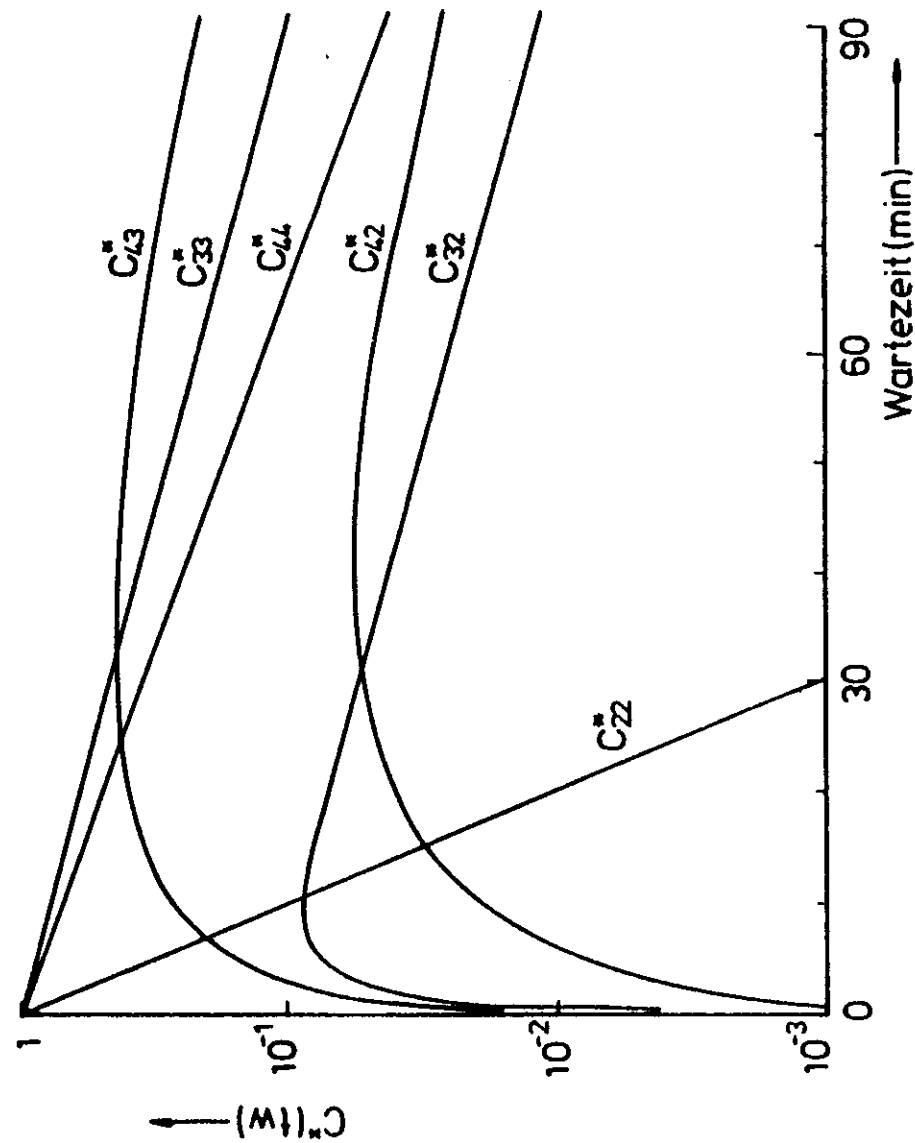


Abb. 5 Funktionen $C(t_A)$ für den Anstieg der Filteraktivität von Rn-220-Folgeprodukten in Abhängigkeit von der Ansaugzeit t_A .

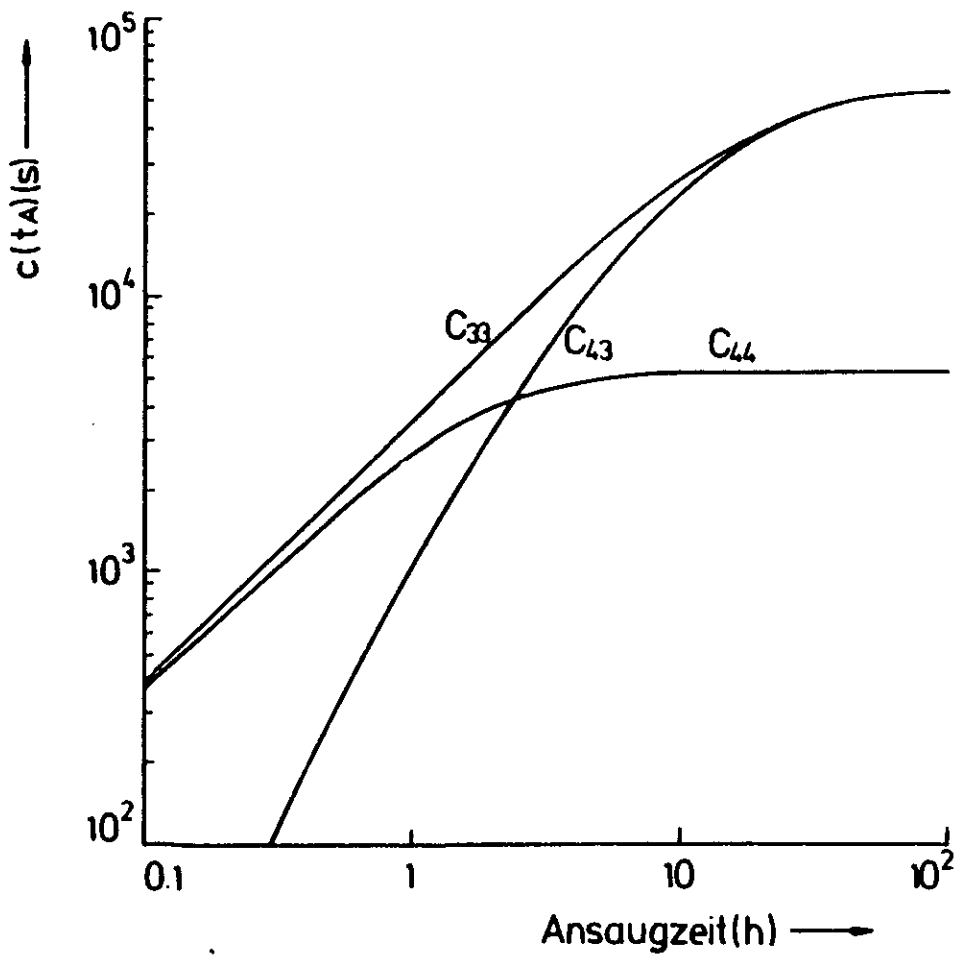


Abb. 6 Funktionen $C^*(t_w)$ für das Abklugen der Filteraktivität der Rn-220-Folgeprodukte nach dem Ansaugende.

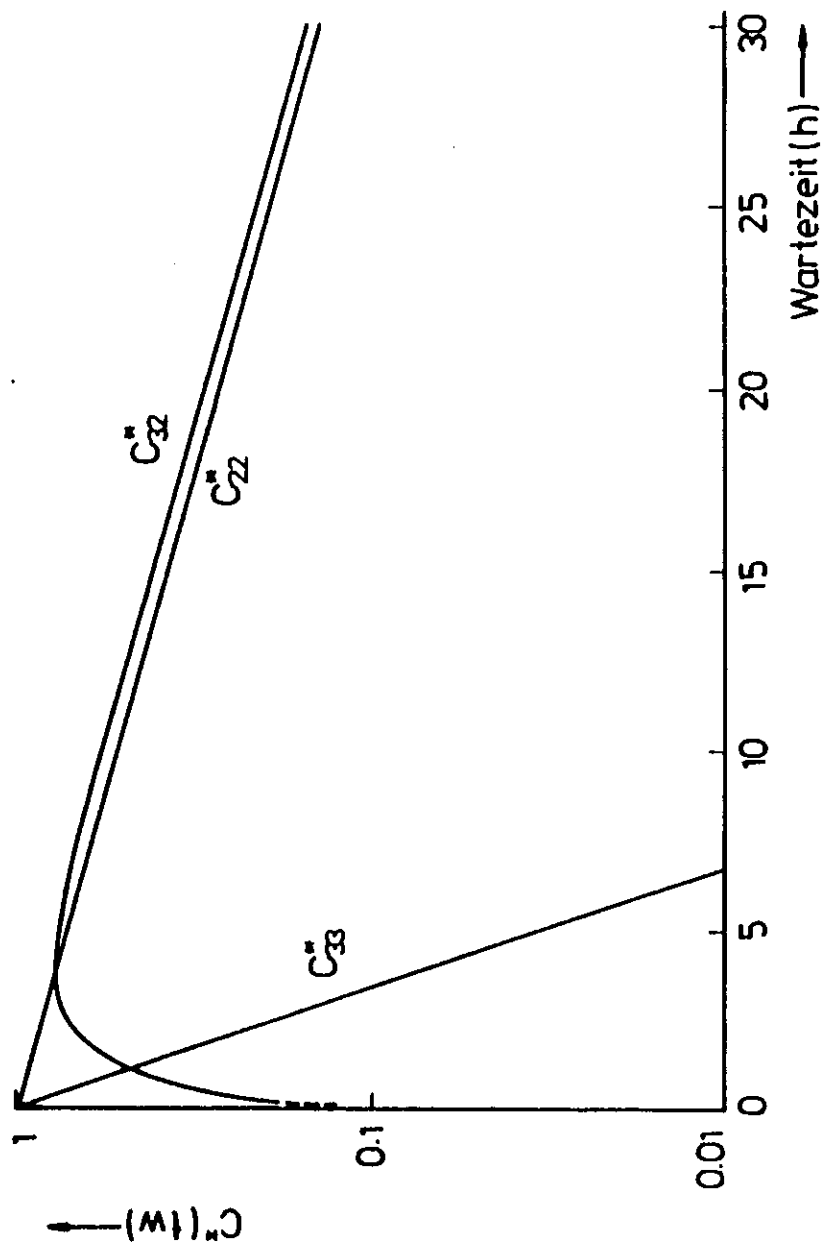


Abb. 7

Zeitlicher Verlauf der Filteraktivitäten von Rn-220-Folgeprodukten während 8-stündiger Ansaugzeit und anschließendem Abklingen.

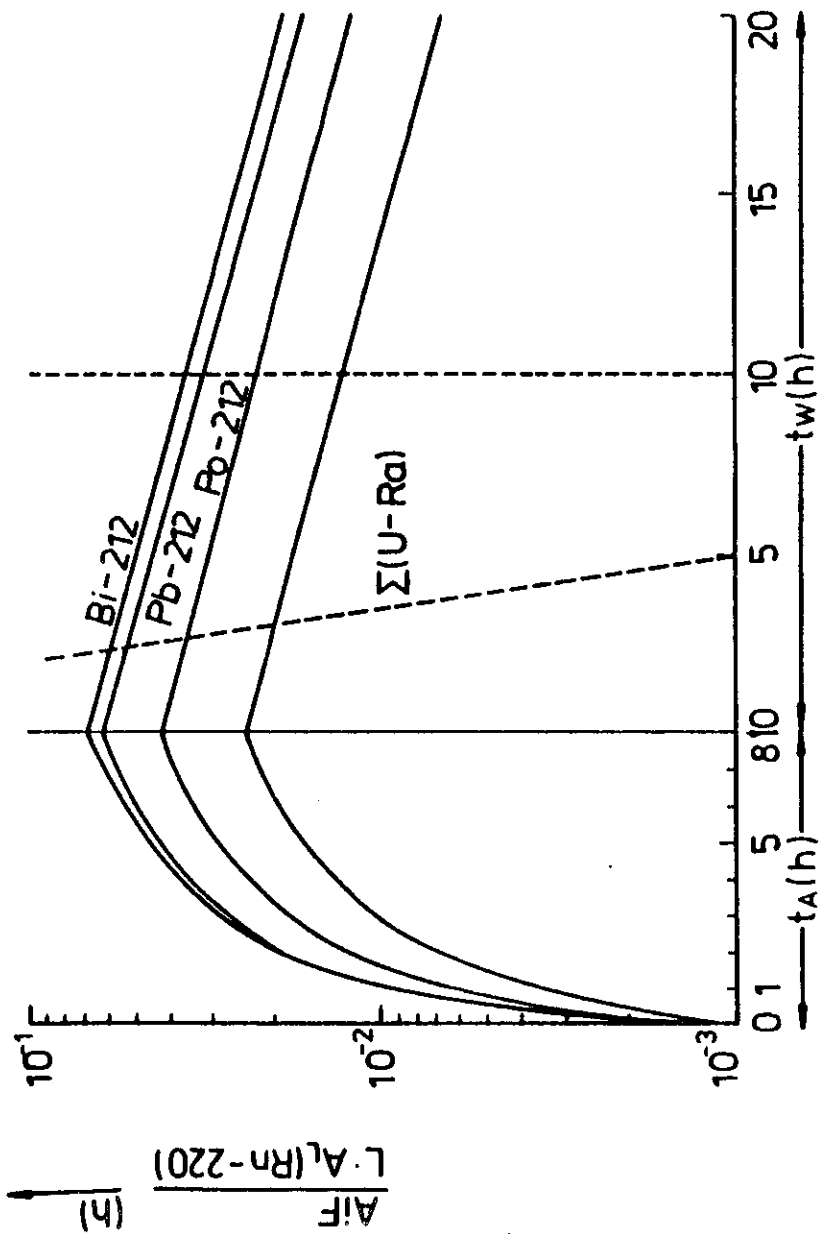
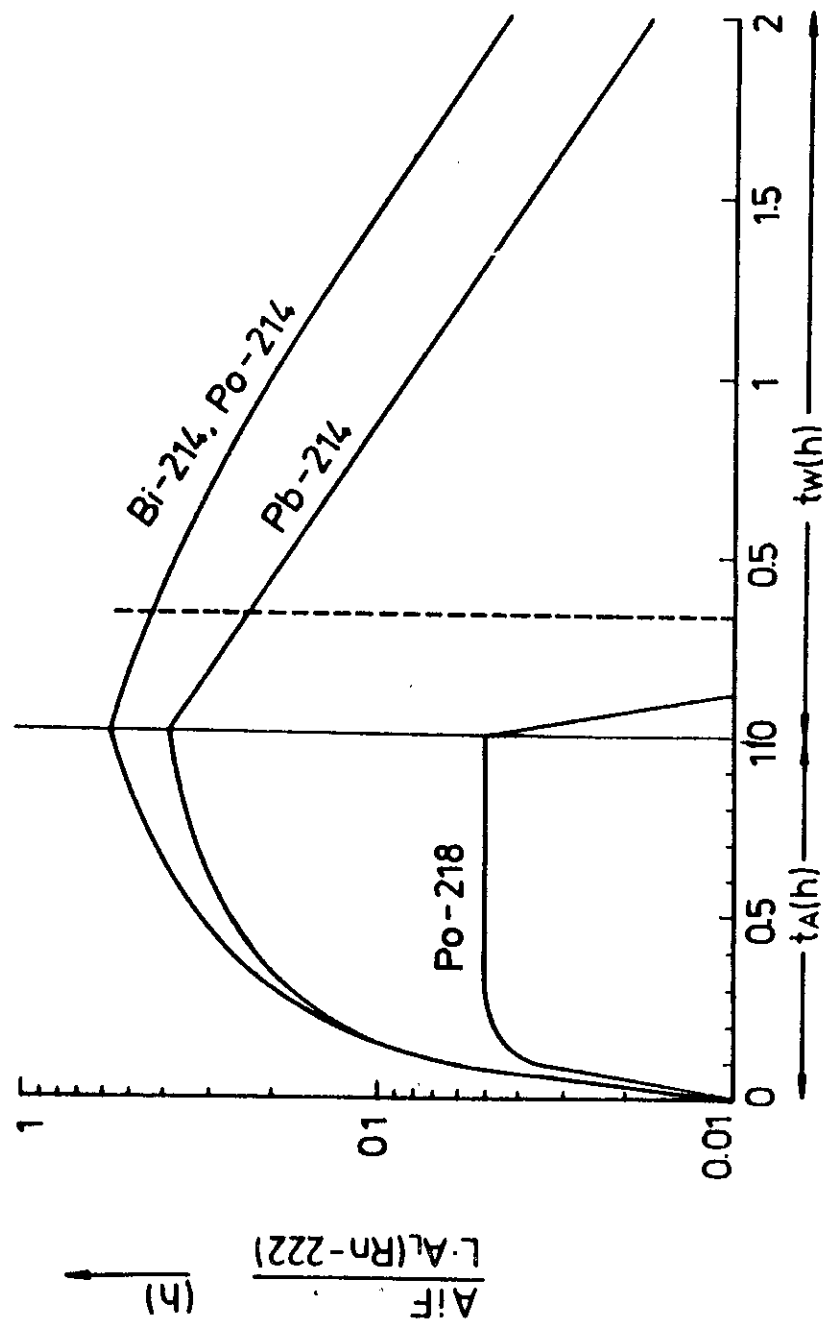


Abb. 8

Zeitlicher Verlauf der Filteraktivitäten von Rn-222-Folgeprodukten während 1-stündiger Ansaugzeit und anschließendem Abklingen.



Interner Bericht
DESY D3-60
Dezember 1986

Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen
von Radon und seinen Folgeprodukten in Luft.

B. Racky

Inhalt:

1. Einleitung
2. Natürliche Radioaktivität der Luft
3. Bestimmung der Luftaktivität aus filtrierte Aerosolen
 - 3.1 Meßprinzip
 - 3.2 Erfassung der Rn-222-Folgeprodukte (U-Ra-Reihe)
 - 3.3 Erfassung der Rn-220-Folgeprodukte (Th-Reihe)
 - 3.4 Überlagerung der Th-Reihe durch die U-Ra-Reihe
 - 3.5 Überlagerung der U-Ra-Reihe durch die Th-Reihe
4. Messungen
 - 4.1 Meßgeräte
 - 4.2 Ergebnisse
 - 4.2.1 Luftaktivität durch Rn-220
 - 4.2.2 Luftaktivität durch Rn-222

Summary:

In order to measure the specific activities of Radon isotopes and their daughters in air, an air-sampler was used to collect airdust on a filter. The α - and β -activities of the filtersamples were detected with a proportional counter in a low-level-arrangement. It is shown that it is possible to distinguish between the Rn-220- and Rn-222-daughters by choosing suitable collecting- and decay-times. Results are given for typical meteorological conditions.

