

H 6 Messung der Rn-222-Exhalationsrate mittels Anreicherungsbox

J. Regner, Wismut GmbH

1 Gegenstand der Messanleitung

Die Messanleitung behandelt die Bestimmung der Radonfreisetzung des Bodens sowie flächenhafter Objekte wie z.B. Bergehalden und Tailings mittels einer Anreicherungsbox¹. Beim beschriebenen Verfahren handelt es sich um die Ermittlung einer örtlich und zeitlich beschränkten Stichprobe der Radonexhalation einer Fläche i. d. R. $< 1 \text{ m}^2$. Die Bestimmung der Radonexhalationsrate erfolgt dabei als Kurzzeitmessung mit einer Messzeit in der Größenordnung einer Stunde. Die Verfahrensbeschreibung beschränkt sich auf die Bestimmung der Radonexhalationsrate der unmittelbaren Fläche der zu untersuchten Messstelle. Die Methodik zur Ermittlung der großflächigen Radonfreisetzung eines gesamten Objektes unter Beachtung der zeitlichen und örtlichen Variabilität der Radonfreisetzung ist nicht Gegenstand der Messanleitung.

Die Messanleitung bezieht sich explizit nur auf das Radonisotop Rn-222 aus der Uran-238-Zerfallsreihe.

2 Definition der Messgröße

Die Radonexhalationsrate ist die Radonaktivität, die pro Zeit- und Flächeneinheit vom Boden oder der Mantelfläche eines Objektes in die freie Atmosphäre abgegeben wird [gebräuchlichste Maßeinheiten: $\text{Bq}/(\text{m}^2\text{s})$ bzw. $\text{Bq}/(\text{m}^2\text{h})$]. Die Radonexhalation ist von der Radonemanation zu unterscheiden, welche innerhalb der porösen Substrate (Böden, Haldenmaterial oder Aufbereitungsrückstände) den Radontransport vom Feststoff in den Porenraum des Substrates beschreibt.

3 Einflussgrößen auf die Radonexhalation

Die grundlegende Ursache der Radonexhalation ist das Vorhandensein des Rn-222-Mutternuklids Ra-226 in einem Substrat (z.B. Boden). Durch die Emanation wird Radon aus dem Feststoff in den Porenraum eines Substrates freigesetzt. Das Verhältnis des in den Porenraum freigesetzten und für Transportprozesse zur Verfügung stehenden Radons zur Radonproduktion eines Substrates wird durch den Emanationsfaktor (auch verbreitet: Emanationskoeffizient) beschrieben. Über den Porenraum kann sich das Radon im Substrat ausbreiten. Für die Radonexhalation ist von Bedeutung, wie der Radontransport in diesem Porenraum in Richtung der Mantelfläche eines Substrates, z.B. der Bodenoberfläche, stattfindet. Als grundlegende

¹ Neben der Nutzung einer Anreicherungsbox sind noch weitere Messmethoden zur Bestimmung der Radonexhalationsrate gebräuchlich. Dabei handelt es sich im Wesentlichen um die Messung der Radonkonzentration in geringer Höhe über dem Boden, die Durchflussmethode und die Aktivkohlemethode [BMU-2003], [SSK-2002]. Diese Methoden werden in der vorliegenden Messanleitung nicht behandelt, sie bedürfen eigenständiger Messanleitungen.

Transportmechanismen kommen die Diffusion und die Konvektion/Advektion mit Bodenluftströmungen in Frage. Beide Transportmechanismen können überlagert sein. Der Radontransport in den porösen Substraten und deshalb auch die Radonexhalation wird durch die Porosität und den Wassergehalt (Wassersättigungsgrad des Porenraumes) und die Temperatur- und Druckverhältnisse des Systems „exhalierendes Substrat-Atmosphäre“ beeinflusst².

Aufgrund dieser Einflussgrößen weist die Radonexhalationsrate im Allgemeinen tages- und jahreszeitliche Schwankungen auf.

4 Beschreibung des Messverfahrens

Für eine Radonexhalationsmessung mit der Anreicherungsmethode kommt eine Box zum Einsatz, die auf die exhalierende Fläche aufgesetzt wird (Abbildung 1). Für die Bestimmung der Radonexhalationsrate ist die Messung der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox erforderlich. Dies kann sowohl durch ein außerhalb der Box angeordnetes Radonmessgerät, das mit dieser über eine Pumpe in Kreislaufschaltung verbunden ist, als auch durch ein Radonmessgerät innerhalb der Box erfolgen.

In der Abbildung 1 ist das Prinzip der Messanordnung mit einem außerhalb der Box angeordneten Radonmessgerätes skizziert.

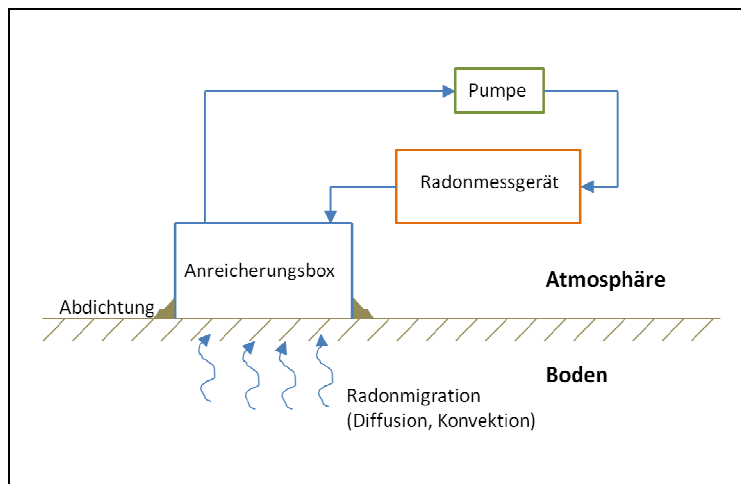


Abbildung 1: Messverfahren zur Bestimmung der Radonexhalationsrate mittels Box-Methode (Radonmessgerät außerhalb der Box und mit dieser in Kreislaufschaltung)

Folgende Anforderungen sind an die Radonmessgeräte zu stellen, die für die Bestimmung der Radonexhalationsrate zum Einsatz kommen:

- Das Radonmessgerät muss die Erfassung einer Zeitreihe der Radonkonzentration ermöglichen.

² Der Vorgang der Radonemanation innerhalb eines porösen Substrates ist ebenfalls eine Funktion der Temperatur-, Feuchte- und Druckverhältnisse.

- Das Radonmessgerät muss hinreichend kurze Messintervalle erfassen können, um die für die Radonexhalationsmessung erforderliche Zeitauflösung zu gewährleisten. In den meisten Fällen sind Radonmessgeräte geeignet, die eine Erfassung der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox in Zeitintervallen von ≤ 10 min ermöglichen.
- Die Radonkonzentrationsmessung mit einem Radonmessgerät muss ein für die Radonkonzentration in der Anreicherungsbox repräsentatives Ergebnis liefern.
- Radonmessgeräte mit einer Verzögerung des Nachweises von Radon (Radoneintritt in Messkammer durch Diffusion, Messung des Radons über die Radonzerfallsprodukte) werden als ungeeignet eingeschätzt, wenn nichtlineare Anstiege der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox auftreten (z. B. beim Einfluss konvektiver Bodenluftströmungen).
- Es sind Radonmessgeräte einzusetzen, die einen hinreichend großen Messbereich besitzen, um die innerhalb der Anreicherungsbox auftretenden Radonkonzentrationen messen zu können.
- Vorzugsweise sollten kontinuierlich aufzeichnende Radonmessgeräte verwendet werden³.

Hinsichtlich der Konfiguration der Anreicherungsbox sind folgende Punkte zu beachten:

- Die Anreicherungsbox ist so zu dimensionieren, dass sie den jeweiligen Anwendungsfällen gerecht wird. Entscheidend ist dafür das Verhältnis des Volumens (V) der Anreicherungsbox zu deren Aufsatzfläche (A), (entspricht der Fläche, deren Exhalationsrate zu bestimmen ist). Bei einer quaderförmigen oder zylindrischen Box ist die Höhe (H) der Quotient aus dem Volumen und der Fläche ($H = V/A$). Dieser Quotient geht direkt als Faktor bei der Berechnung der Radonexhalationsrate ein. Als grobe Anhaltspunkte gelten, dass bei niedrigen Exhalationsraten flache Boxen von Vorteil sind und für die Messung hoher Radonexhalationsraten (insbesondere bei konvektiven Bodenluftströmungen) höhere Anreicherungsboxen geeignet sind.
- Um Randeffekte zu minimieren, sollte die Aufsatzfläche der Box eine gewisse Größe nicht unterschreiten. Es wird empfohlen, den Durchmesser der Box nicht kleiner als etwa 0,3 m bzw. die Aufsatzfläche nicht kleiner als 0,05 m² zu wählen.
- Es muss gewährleistet sein, dass in der Box eine annähernd homogene Radonkonzentration vorliegt. Gegebenenfalls sind Hilfsmittel zur Herstellung der Homogenität der Radonkonzentration (z.B. durch Einsatz eines Ventilators) vorzusehen.

³ Prinzipiell ist auch die Möglichkeit gegeben, in bestimmten Zeitintervallen Luftproben aus der Anreicherungsbox zu entnehmen und die Radonkonzentration diskontinuierlich z.B. mittels Lucas-Zellen zu bestimmen. Hierbei ist u.a. zu beachten, dass das entnommene Volumen klein gegenüber dem Volumen der Anreicherungsbox sein muss oder eine Volumenkorrektur der Radonkonzentrationsergebnisse vorgenommen wird.

- Eine kreisförmige Aufsatzfläche der Anreicherungsbox ist in Bezug auf die Minimierung der Randeffekte und auf die Homogenisierung der Radonkonzentration günstiger als eine rechteckige Form.
- Die Temperatur in der Anreicherungsbox muss der Umgebungstemperatur entsprechen. Es sind deshalb geeignete Maßnahmen zu treffen, um ein Aufheizen der Box z. B. durch Sonneneinstrahlung zu verhindern, da anderenfalls die resultierende Druckänderung in der Box die Radonexhalation mehr oder minder stark beeinflussen kann.

5 Messdurchführung

Vor der eigentlichen Radonexhalationsmessung muss die Anreicherungsbox mit der Umgebungsluft gespült werden, so dass die Radonkonzentration in der Box dem Wert der freien Atmosphäre entspricht. Diese Radonkonzentration ist mit dem Radonmessgerät vor dem Beginn der Radonexhalationsmessung zu bestimmen. Dieser Messwert dient als Startwert der Berechnung der Radonexhalationsrate und fällt besonders ins Gewicht, wenn die Radonkonzentration in der Box nichtlinear in Abhängigkeit von der Messzeit ansteigt. Die Höhe dieses Startwerts (Höhe der Radonkonzentration in der freien Atmosphäre) kann bereits einen wichtigen Hinweis auf die Höhe der zu erwartenden Radonexhalation geben.

Für die eigentliche Messung der Radonexhalationsrate von Flächen wird die Anreicherungsbox auf das zu untersuchende Substrat aufgesetzt und die Entwicklung der Radonkonzentration in der Box über den Zeitraum der Messung zeitaufgelöst aufgenommen. Damit wird eine funktionale Abhängigkeit der Radonkonzentration von der Messzeit erfasst. Mit dem Aufsetzen der Anreicherungsbox ist eine Abdichtung zwischen der zu messenden Fläche und dem Rand der Box herzustellen (z.B. mit feinkörnigem, feuchtem Sand oder Lehm), die Leckagen minimiert. Die zu untersuchende exhalierende Bodenoberfläche unter der Anreicherungsbox darf in Vorbereitung der Messung und während der Messung nicht verändert werden, da dadurch das Radonexhalationsverhalten gestört werden kann. Der Startzeitpunkt der Radonexhalationsmessung ist genau zu erfassen und bei der Verwendung kontinuierlich messender Radonmessgeräte mit deren Messintervall zu synchronisieren.

Die Zeitdauer der Erfassung der Radonkonzentration richtet sich nach dem Anstieg der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox und ist operativ zu entscheiden. Unter der Bedingung, dass aus dem Boden ausschließlich eine Diffusion des Radons in die Anreicherungsbox stattfindet, hat sich eine Messzeit in der Größenordnung einer Stunde als ausreichend erwiesen. Bei einem Messintervall von 10 Minuten ergeben sich somit innerhalb einer Stunde 7 Stützpunkte für die Auswertung der Radonexhalationsrate.

Bei höheren Radonexhalationsraten, insbesondere beim Auftreten konvektiver Bodenluftströmungen, kann eine Verkürzung der Messzeit von Vorteil sein. Hierbei ist es wichtig, bei der Radonkonzentrationsmessung möglichst kurze Zeitintervalle zu verwenden, um eine genügende Anzahl von Stützpunkten (mindestens 4) für die Berechnung der Radonexhalationsrate zu erhalten, um den Anstieg der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox hinreichend gut auswerten zu können.

Ergänzend zur Radonexhalationsmessung sind Angaben zum Messort einschließlich der Bodenbeschaffenheit, zum Messzeitpunkt und zu den meteorologischen Bedingungen während der Messung zu erfassen, da sie für die spätere Bewertung der Messung erforderlich sind.

Auf sehr grobstückigem und durch hohe Luftwegsamkeiten charakterisierten Materialien (z.B. Steinschüttungen) und bei sehr starken konvektiven Bodenluftströmungen (Strömungsgeschwindigkeiten $> 5 \cdot 10^{-4}$ m/s) ist die Messung der Radonexhalationsrate mittels Anreicherungsbox ungeeignet. Hier wird auf andere Methoden wie die Messung der Radonkonzentration in geringer Höhe über dem Boden [BMU-2003] verwiesen.

6 Auswertung der Radonexhalationsrate

Die Radonexhalation der zu untersuchenden Fläche führt über die Zeitdauer der Messung zu einem Anstieg der Radonkonzentration in einer darauf aufgesetzten Anreicherungsbox. Für die Berechnung der Radonexhalationsrate muss neben der Auswertung der zeitlichen Änderung der Radonkonzentration die Aufsatzfläche und das Volumen der Anreicherungsbox berücksichtigt werden. Die Exhalationsrate j_{Rn} ergibt sich aus der folgenden Beziehung⁴:

$$j_{Rn} = \frac{V}{A} \cdot \frac{dC(t)}{dt} \quad (1)$$

mit

j_{Rn}	Radonexhalationsrate [Bq/(m ² s)],
V	effektives Volumen der Anreicherungsbox [m ³] (unter Berücksichtigung der Volumenänderung durch das Radonmessgerät),
A	Aufsatzfläche der Anreicherungsbox [m ²],
$\frac{dC(t)}{dt}$	Anstieg der Radonkonzentrations-Zeit-Kurve im linearen Bereich bzw. 1. Ableitung bei einem nichtlinearen Anstieg zum Zeitpunkt $t = 0$ der Messung.

Im Idealfall tritt ein annähernd linearer Anstieg der Radonkonzentration über die Zeitdauer der Radonexhalationsmessung auf. Für diesen Fall ist zur Berechnung der Radonexhalationsrate die Ermittlung des Differenzenquotienten des Radonkonzentrationsanstieges in der Anreicherungsbox und der zugehörigen Messzeit entsprechend der folgenden Gleichung ausreichend:

$$j_{Rn} = \frac{V}{A} \cdot \frac{(C(t_2) - C(t_1))}{(t_2 - t_1)} \quad (2)$$

mit

t_1	Beginn des Zeitbereiches, der zur Auswertung herangezogen wurde [s],
-------	--

⁴ Bei der in Bezug zur Halbwertszeit des Radons kurzen Messzeit der Radonexhalationsmessung (in der Regel eine Stunde) kann auf eine Korrektur aufgrund des Radonzerfalls (Halbwertszeit von etwa 3,8 Tagen) bei der Bestimmung der Radonexhalationsrate verzichtet werden.

- t_2 Ende des Zeitbereiches, der zur Auswertung herangezogen wurde [s],
- $C(t_1)$ Radonkonzentration [Bq/m³] zum Zeitpunkt t_1 und
- $C(t_2)$ Radonkonzentration [Bq/m³] zum Zeitpunkt t_2 .

Vorzugsweise ist eine lineare Regression der Messwerte der Radonkonzentration vorzunehmen. Der Anstieg der Regressionsgeraden kann dann anstelle des Differenzenquotienten in Gleichung (2) zur Berechnung der Radonexhalationsrate verwendet werden.

Das Beispiel in Abbildung 2 veranschaulicht den Fall eines annähernd linearen Anstieges der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox und die Auswertung der Messwertkurve mittels der linearen Regression.

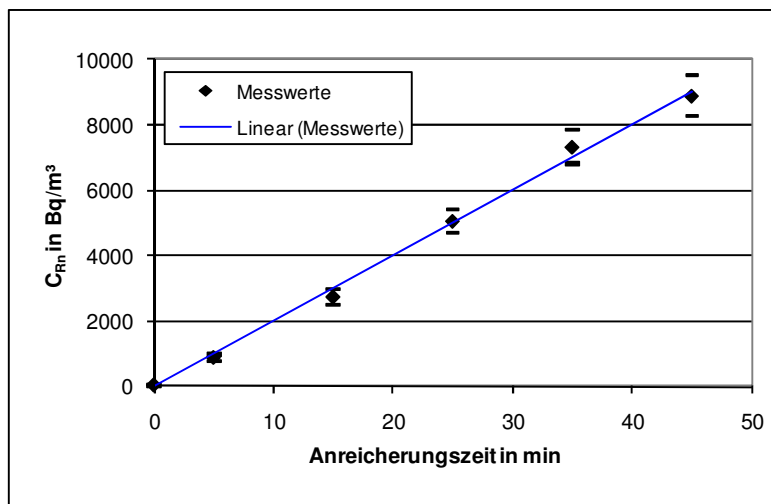


Abbildung 2: Ermittlung der Radonexhalationsrate aus einem linearen Anstieg der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox

In diesem konkreten Fall wurde eine zylindrische Radonexhalationsbox mit einer Fläche von 0,053 m² und einem Volumen (einschließlich des Messkammervolumens des angekoppelten Radonmessgerätes) von 0,0207 m³ verwendet. Die im Beispiel ermittelte Radonexhalationsrate betrug 1,30 Bq/(m²s).

Wenn nichtlineare Anstiege der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox auftreten, ist die Anpassung einer nichtlinearer Modellfunktion an die Radonkonzentrationsmesswerte erforderlich und der Differentialquotient dieser Modellfunktion zum Zeitpunkt $t = 0$ zu bestimmen.

Wesentliche Ursachen für nichtlineare Anstiege können sein:

- der Einfluss konvektiver Bodenluftströmungen, die in die Anreicherungsbox einen Druckaufbau verursachen, welcher der Radonexhalation entgegenwirkt,
- eine Leckrate des Systems Anreicherungsbox-Boden.

Eine einfache Näherung kann für diesen Fall durch die folgende Modellfunktion vorgenommen werden:

$$C(t) = C_{Rn_System} \cdot (1 - e^{\lambda_{System} \cdot t}) + C(0) \quad (3)$$

mit

C_{Rn_System} asymptotischer Wert der Radonkonzentration [Bq/m³] in der Modellfunktion (abzüglich der Radonzentration zum Zeitpunkt t = 0)

λ_{System} Zeitkonstante der Modellfunktion [s⁻¹]

Die beiden Parameter C_{Rn_System} und λ_{System} müssen durch eine Funktionsanpassung der Modellfunktion an die zeitliche Funktion der gemessenen Radonkonzentration bestimmt werden.

Der Differentialquotient der Modellfunktion zum Zeitpunkt t=0 ergibt sich als Produkt aus C_{Rn_System} und λ_{System} . Die Radonexhalationsrate kann unter Verwendung dieses Differentialquotienten entsprechend der folgenden Gleichung berechnet werden:

$$j_{Rn} = \frac{V}{A} \cdot C_{Rn_System} \cdot \lambda_{System} \quad (4)$$

Das Beispiel in Abbildung 3 zeigt einen nichtlinearen Anstieg der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox, für den ein Fit entsprechend des Modells aus Gleichung (3) vorgenommen wurde. In der Abbildung ist der zur Berechnung der Radonexhalationsrate verwendete Anstieg der Modellfunktion bei t = 0 ebenfalls dargestellt.

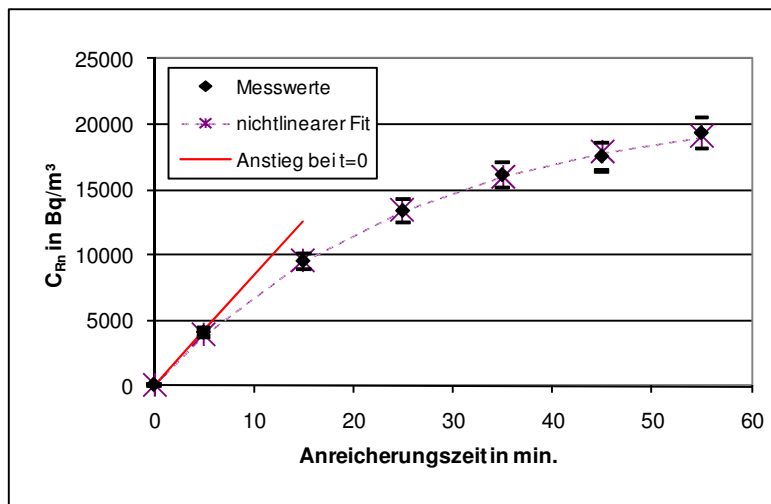


Abbildung 3: Ermittlung der Radonexhalationsrate aus einem nichtlinearen Anstieg der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox

Für das Beispiel in Abbildung 3 beträgt die ermittelte Radonexhalationsrate bei gleicher Konfiguration der Messanordnung (zylindrische Radonexhalationsbox, $A = 0,053 \text{ m}^2$ und

$V = 0,0207 \text{ m}^3$ $5,4 \text{ Bq}/(\text{m}^2\text{s})$ (Parameter bei der Berechnung für das Beispiel: $C(0) = 104 \text{ Bq}/\text{m}^3$, $C_{\text{RnSystem}} = 21.620 \text{ Bq}/\text{m}^3$, $\lambda_{\text{System}} = 6,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$).

Bei der Darstellung und Auswertung der Funktion der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox ist zu berücksichtigen, dass die meisten Radonmonitore keine Momentananzeige der Radonkonzentration liefern, sondern einen integralen Wert der Radonkonzentration während eines vorgewählten Messintervalles, demzufolge der Messwert näherungsweise der Mitte des Messintervalles zuzuordnen ist.

Unter ungünstigen Bedingungen (signifikante Rn-220-Exhalationen, Empfindlichkeit des Radonmonitors gegenüber Rn-220 und flache Boxgeometrie) kann auch eine Störung der Radonexhalationsmessung durch Rn-220 auftreten, die durch einen weiteren Term mit eigener Zeitkonstante in der Gleichung (3) zu berücksichtigen wäre. Bei Anreicherungszeiten, die bei > 3 Minuten liegen (entspricht etwa 3 Halbwertszeiten von Rn-220), tritt ein möglicher Rn-220-Einfluss aufgrund des dann vorhandenen radioaktiven Gleichgewichtszustandes als konstanter Offset auf und kann bei der Funktionsanpassung zur Auswertung der Radonexhalationsrate als Konstante behandelt werden.

7 Kalibrierung

Eine Kalibrierung der Radonexhalationsmessung kann sich nur auf die Kalibrierung der zur Messung der Radonkonzentration in der Anreicherungsbox eingesetzten Radonmessgeräte beziehen. Die dafür in Frage kommenden Messgeräte sind mit den Geräten identisch, die auch zur Messung der Radonkonzentration in der Luft eingesetzt werden. Hinsichtlich der Kalibrierung der für die Radonexhalationsmessung eingesetzten Radonmessgeräte werden die gleichen Anforderungen wie für eine Messung der Radonkonzentration in der Luft gestellt. An dieser Stelle wird daher auf die Ausführungen zur Kalibrierung von Radonmessgeräten im Leitfaden zur Messung von Radon, Thoron und ihren Zerfallsprodukten [SSK-2002] verwiesen.

8 Literatur

[Tanner-1980] Tanner, A.B. (1980): Radon migration in the ground: a supplementary review.- in: Gesell, T.F.; Lowder, W.M. (Hrsg.): The natural radiation environment, III.- 5-56, Nat. Techn. Inform. Service, U.S. Dept. of Energy Rep. CONF-780422

[SSK-2002] Leitfaden zur Messung von Radon, Thoron und ihren Zerfallsprodukten (hrsg. im Auftr. des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit von der Geschäftsstelle der Strahlenschutzkommission beim Bundesamt für Strahlenschutz, Red.: O. Sarenio), Urban und Fischer, München, 2002, (Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission Bd. 47), ISBN 3-437-21478-0

[BMU-2003] Schulz, H. et al.: Entwicklung einer Messmethodik zur Bestimmung der Radonquellstärke großer Flächen und Bewertung der Radondämmwirkung von Abdeckschichten. Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, BMU-2003-622, www.bmu.de/strahlenschutz/doc/4387.php