Experimentelle und theoretische Untersuchungen über die Emanation und Migration von Radon in Baustoffen und Bauwerksabdichtungen

Dissertation zur Erlangung des Grades des Doktors der Naturwissenschaften der Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultäten der Universität des Saarlandes

> vorgelegt von Bernd Hoffmann

> > Saarbrücken 2004

Tag des Kolloquiums: 24. 6. 2005 Dekan: Prof. Dr. Th. Wichert

Prüfungsausschuss

Vorsitzender: Prof. Dr. R. Pelster 1. Berichterstatter: Prof. Dr. G. Keller 2. Berichterstatter: Prof. Dr. Th. Wichert

Promovierter akademischer Mitarbeiter: Dr. A. Tschöpe



Inhaltsverzeichnis

1	Ein	leitung	r 5	7
2	Mes	\mathbf{ssmeth}	nodik	13
	2.1	Reinst	tgermanium-Detektoren (HPGe)	. 13
	2.2		kohledetektoren	
	2.3	Kerns	purdetektoren (SSNTD)	. 15
	2.4		nexhalation und -emanation	
	2.5		ndiffusion	
	2.6	Boden	aluftmessung	. 23
3	Rac	lonmig	grationsuntersuchungen	25
	3.1	Ziel ui	nd Überblick	. 25
	3.2	Exhala	ations- und Diffusionsmessungen an Proben	. 25
		3.2.1	CEM I - III	. 26
		3.2.2	Polymerverdichteter Beton	. 28
		3.2.3	Dichtungsbahnen aus Kunststoff	. 28
		3.2.4	Dichtungsbahnen aus Bitumen	. 29
		3.2.5	$Kunststoff modifizierte\ Bitumendick beschichtungen\ .\ .\ .$. 29
		3.2.6	Sonstige Baustoffe	
	3.3	Messu	ngen an einer Modellhausecke	. 29
		3.3.1	Betonplatte	. 29
		3.3.2	Mauerwerk	. 30
		3.3.3	vertikale Isolierung	. 32
		3.3.4	horizontale Isolierung	. 32
		3.3.5	Abschätzung der Innenraumkonzentration	. 32
	3.4	Messu	ngen an realen Häusern	. 33
		3.4.1	Innenraumkonzentration	. 35
		3.4.2	Bodenluftmessungen	
		3.4.3	Bauliche Gegebenheiten	. 37
	3.5	Diskus	ssion	. 38
4	Em	anatio	n und Diffusion von Radon	41
	4.1	Herlei	tung der Gleichungen	. 41
	4.2	Diffusi	ionskonstante	. 43
	4.3	Vergle	eich zwischen freier und gebundener Exhalation	. 43
	4.4	Zeitab	bhängige gebundene Exhalation	. 45

	4.5	Emanation	5
	4.6	Emanationskoeffizient	_
		4.6.1 Der Rückstoß	
		4.6.2 Diffusion von Radon in Gesteinen 4	7
		4.6.3 Auflösen der Matrix	7
	4.7	Poröse Medien	8
		4.7.1 Einfache Porenmodelle	3
		4.7.2 Das Dusty-Gas-Modell	9
		4.7.3 Gittermodelle	9
		4.7.4 Fraktale	Э
5	Mes	sungen des Emanationskoeffizienten 5.	L
	5.1	Messungen an einer Pulverprobe	1
		5.1.1 Abhängigkeit der Emanation von der Feuchte 54	4
		5.1.2 Unterschied des Emanationskoeffizienten zwischen Radon	
		und Thoron	5
		5.1.3 Gammaspektroskopische Messmethode 50	6
	5.2	Messungen an Phosphorgips	7
	5.3	Messungen an CEM I - III	9
	5.4	Weitere Baustoffproben	1
6	The	oretische Überlegungen zur Emanation 63	3
	6.1	Analytische Rechnungen	3
		6.1.1 Planparallele Pore	3
		6.1.2 Kugelförmiges Korn	5
		6.1.3 Zylinderförmige Pore	1
		6.1.4 Fraktale Pore	1
	6.2	Simulationen für verschiedene Geometrien	2
7	Sim	lation der Diffusion und Exhalation 83	L
	7.1	Einführung	1
	7.2	Umsetzung der Perkolationsrechnung 85	2
	7.3	Ergebnisse	4
8	Zus	mmenfassung 89)
9	Anh	ang 91	1
	9.1	Fragebogen	1
	9.2	Tabellen	5
	9.3	Makro zur Auswertung von Kernspurdetektoren 109	2
	9.4	Programmfragment zur Emanation	3
	9.5	Programmfragment zur Perkolation	6
Li	terat	urverzeichnis 118	5
\mathbf{A} l	bbild	ingsverzeichnis 122	2
Tг	belle	overzeichnis 12:	5

Kapitel 1

Einleitung

Jeder Mensch in Deutschland unterliegt im Mittel einer Strahlenexposition von ca. 4 mSv/a. Der Ursprung dieser Exposition kann in etwa zu gleichen Teilen in einen künstlichen und einen natürlichen Beitrag aufgeteilt werden (siehe Abb. 1.1) [1]. Den Großteil der zivilisatorisch bedingten künstlichen Strahlen-

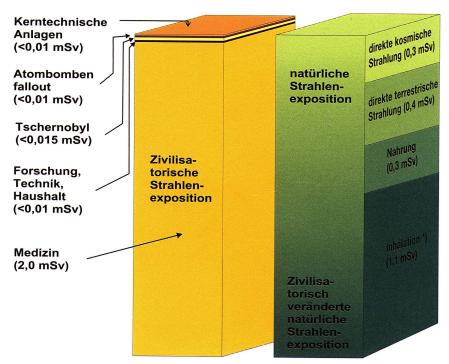


Abbildung 1.1: Mittlere effektive Jahresdosis durch ionisierende Strahlung im Jahr 2000 [1].

exposition (ca. 2 mSv/a) erhält der Mensch durch die Anwendung von Strahlen in der Medizin. Der Anteil aus kerntechnischen Anlagen, Atombombenfallouts, der Anwendung von Strahlen in der Forschung, Technik und im Haushalt sowie die Auswirkungen von Tschernobyl sind dagegen für die mittlere Exposition vernachlässigbar. Da sich die Anzahl und Stärke der in der Diagnostik und Therapie eingesetzten ionisierenden Stahlen prinzipiell regeln lassen, hat der

Mensch einen Einfluss auf diese Exposition.

Die natürliche Strahlenbelastung [2] setzt sich aus der kosmischen Höhenstrahlung (ca. $0.3\,\mathrm{mSv/a}$), der direkten terrestrischen Strahlung (ca. $0.4\,\mathrm{mSv/a}$) und der mit der Nahrung aufgenommenen oder inhalierten Radionuklide (ca. $1.4\,\mathrm{mSv/a}$) inkorporierten internen Strahlung zusammen. Diese Strahlenbelastung lässt sich nur im geringen Teil beeinflussen.

Eine gewisse Sonderstellung kommt der Inhalation radioaktiver Isotope zu, die im Durchschnitt zu einer Exposition von 1,1 mSv/a führt. Diese ist größten Teils auf die Aufnahme des Edelgases Radon-222 und seiner Folgeprodukte zurückzuführen. Einerseits gehört Radon als Folgeprodukt des natürlich in jedem Boden vorkommenden Uran-238 [3] zu der natürlichen Strahlenbelastung, andererseits wird die aufgenommene Dosis durch zivilisatorische Einflüsse verändert. Zu diesen Einflüssen gehört das Wohnen in Häusern (u.a. [4, 5]). Die Eigenschaften des Baugrundes, die Bauweise und -substanz der Häuser (u.a. [6]) sowie das Wohnverhalten sind maßgebend für die Radonbelastung.

Es wurden zahlreiche Untersuchung der gesundheitlichen Auswirkungen von Radon und der Ablagerung der kurzlebigen Folgeprodukte durchgeführt [7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14]. Eine Zusammenfassung der epidemiologischen Studien findet sich in [15]. Die Gesamtheit der Studien zeigt einen klaren Zusammenhang zwischen der Radonexposition und dem Lungenkrebsrisiko. Dabei zeigen die Daten einen linearen Zusammenhang ohne Schwellenwert. Laut Statistik kann für Nichtraucher ein zusätzliches relatives Lungenkrebsrisiko von 0,14 pro 100 Bq/m³, für Raucher ein zusätzliches relatives Risiko von 0,07 pro 100 Bq/m³ angenommen werden. Ab einer Innenraumkonzentration von 250 Bq/m³ kann von einem signifikanten Anstieg des Lungenkrebsrisikos ausgegangen werden. Die Inhalation der Radonfolgeprodukte stellt neben dem Rauchen die zweithäufigste Ursache für Lungenkrebs dar. Weitere kanzerogene Wirkungen, wie Magenkrebs durch in Wasser gelöstes Radon oder Hautkrebs durch die Ablagerung von Radonfolgeprodukte, sind möglich, stellen aber nur ein geringes Risiko dar [16, 17].

Radon-222 entsteht in den oberflächennahen Bodenschichten als Teil der Uran-Zerfallsreihe aus dem Zerfall des Radiums-226. Als Edelgas ist es farb- und geruchlose, chemisch inert [18] und kann wegen der relativ langen Halbwertszeit von 3,825 Tagen über Spalten, Risse und Poren ins Freie oder über Öffnungen in den erdberührenden Teilen in ein Gebäude eindringen (siehe Abb. 1.2 und Abb. 1.3).

In Deutschland variiert die Bodenluftkonzentration, je nach geologischen Gegebenheiten, zwischen etwa 3 und über 500 kBq/m³ [19]. Tritt das Radon in die freie Luft aus, kommt es zu einer schnellen Verdünnung. Antropogene Auffüllungen und Verdichtungen in urbanen Gebieten können dabei den Radonaustritt gegenüber einem vergleichbaren, natürlich gewachsenen Boden verändern [20, 21]. In der bodennahen Luft wurden im Jahresmittel Werte zwischen 8 und 30 Bq/m³ gefunden [22]. In Häusern kann sich das Radon aber anreichern. Im Durchschnitt liegt die Innenraumkonzentration in Deutschland um 50 Bq/m³, in vereinzelten Häusern sind aber Werte von bis 100 kBq/m³ gemessen worden [23]. In etwa einem Prozent der Häuser in Deutschland wurde eine Radonluftkonzentration von mehr als 200 Bq/m³, in etwa zwei Promille



Abbildung 1.2: Schematische Ausbreitung des Radons [1].

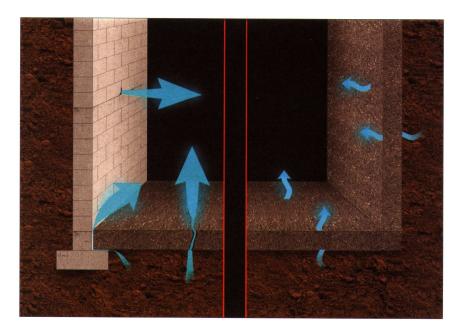


Abbildung 1.3: Konvektives Eindringen radonhaltiger Bodenluft durch Leckstellen (links) und Diffusion von Radon durch Bauteile hindurch (rechts) [1].

von mehr als 400 Bq/m³ gemessen [1].

Da die Bodenluftkonzentration in den meisten Fällen keine oder nur eine untergeordnete Rolle in der Entscheidung der Bauherren für oder gegen ein Baugrundstück spielt, kommt der Bauweise eines Neubaus und die zu verwendenden Materialien eine größere Bedeutung zu. Aus Labormessungen sind die Radondiffusionseigenschaften vieler Bau- und Isoliermaterialen bekannt [24, 25, 26, 27], allerdings lassen diese Untersuchungen nur eingeschränkt Aussagen zu, wie sich

das untersuchte Material, Materialkombinationen und Verbindungsstellen an einem realen Haus verhalten und welche Verarbeitungsschritte Einflüsse auf den Radontransfer aus dem Boden in die Raumluft haben. Bereits bei einem geringen Druckgefälle zwischen Bodenluft und Innenraum kann die Bodenluft angesaugt werden. Auf der anderen Seite bewirkt die geringe Luftwechselrate, bedingt durch umfangreiche Wärmedämmmaßnahmen, dass das Radon im Haus gehalten wird (Abb. 1.4).



Abbildung 1.4: Aufbau einer Feuchte- und Wärmeisolierung. Die Perimeterdämmung dient gleichzeitig zum Schutz der Feuchteisolierung und wird selbst wiederum durch ein zweites Mauerwerk geschützt.

Bei Neubauten lassen sich preiswerte präventive Schutzmaßnahmen gegen Radon durchführen [28, 29]. Im Zusammenhang mit der Isolierung erdberührender Bauwerksteile gegenüber Bodenfeuchte existieren bereits Normen und Richtlinien [30, 31, 32]. Da in Deutschland immer mit einer Bodenfeuchtigkeit zu rechnen ist, müssen alle Neubauten gegen Bodenfeuchtigkeit isoliert werden. Diese Isolierungen beeinflussen auch die Radonmigration aus der Bodenluft ins Gebäude. Je nach Menge des anstehenden Wassers unterscheidet man zwischen drückenden bzw. nichtdrückendem Wasser. Im letzteren Fall reicht z.B. eine Bitumendickbeschichtung als vertikale Isolierung des Mauerwerkes und mineralische Dichtungsschlämme am Wandfußpunkt als waagerechte Abdichtung aus. Eine betonierte Bodenplatte normaler Dicke hält die Feuchtigkeit von unten ab. Bei drückendem Wasser bietet sich zum Beispiel an, zwischen der Sauberkeitsschicht (Schotter) und einer dickeren Bodenplatte (Stahlbeton) eine Lage Bitumendickbeschichtung und eine PE-Folie zu legen. Eine andere Möglichkeit zu Verhindern, dass die Bodenfeuchtigkeit in die Bodenplatte und in das Mauerwerk eindringt, ist eine Drainagesystem. Es stellt sich somit die Frage, bis zu welcher Radonbodenluftkonzentration vorhandene Baurichtlinien ausreichen. Die Sanierung von bestehenden Altbauten ist komplizierter und nicht immer erfolgreich [33].

Das ebenfalls im Erdboden aus der Thorium-Zerfallsreihe vorhandene Radium-224 zerfällt in Radon-220, welches auch unter dem Namen Thoron bekannt ist. Die Halbwertszeit des Thorons liegt im Gegensatz zum Radon-222 bei nur 55 Sekunden. Auf Grund dieser kurzen Halbwertszeit spielt Thoron in den meisten Fällen im Strahlenschutz keine oder nur eine untergeordnete Rolle. Allerdings können die Zerfallsprodukte des Thoron die Messung von Radon und deren Zerfallsprodukte beeinflussen.

In Deutschland existiert noch keine gesetzlich verbindliche Regelung bezüglich der Radonexposition in Wohnräumen. Die Kommission der Europäischen Gemeinschaft hat eine "Empfehlung zum Schutz der Bevölkerung vor Radonexposition innerhalb von Gebäuden" [34] formuliert, in der die Jahresdurchschnittliche Radonkonzentration in bestehenden Wohnräumen einen Wert von $400~{\rm Bq/m^3}$, in Neubauten von $200~{\rm Bq/m^3}$ nicht überschritten werden sollte.

In der Neufassung der Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung – StrlSchV) [35] aus dem Jahr 2001 werden erstmalig Regelungen vorgegeben, die die Erfassung, Begrenzung und gegebenenfalls Reduzierung der Exposition und der daraus folgende Körperdosis an eng spezifizierten Arbeitsplätzen vorschreiben. Als Arbeitsfelder, bei denen erheblich erhöhte Expositionen durch Radon-222 auftreten können, werden Arbeiten in untertägigen Bergwerken, Schächten und Höhlen, Besucherbergwerken, Radon-Heilbäder und -Heilstollen sowie Anlagen der Wassergewinnung, -aufbereitung und -verteilung genannt. In diesen Arbeitfeldern muss eine Abschätzung der Radon-222-Exposition oder der Körperdosis am Arbeitsplatz durchgeführt werden. Überschreitet die Körperdosis den Wert von 6 Millisievert im Kalenderjahr, so ist dies den Behörden mitzuteilen. Weiterhin gilt der Grenzwert von 20 Millisievert pro Kalenderjahr für beruflich strahlenexponierte Personen nun auch für Arbeiter in diesen Arbeitsfeldern. Man geht davon aus, dass unter normalen Umständen dieser Wert nicht erreicht wird, wenn das Produkt aus der Aktivitätskonzentration von Radon-222 am Arbeitsplatz und der Aufenthaltszeit am Arbeitsplatz im Kalenderjahr 2·10⁶ Bgm⁻³h nicht überschreitet. Bei einer Jahresarbeitszeit von 2000 h entspricht dies einer mittleren Radonkonzentration von 1000 Bqm⁻³ am Arbeitsplatz. Damit entspricht dieser Wert der Empfehlung der International Commission on Radiological Protection (ICRP) [36], die einen Eingreifwert im Bereich von 500 Bqm⁻³ bis 1500 Bqm⁻³ vorsieht. Für den Grenzwert von 20 Millisievert wurde ein Expositionswert von $6 \cdot 10^6 \,\mathrm{Bgm^{-3}h}$ festgelegt.

Kapitel 2

Messmethodik

Zur Messung der Radium/Thorium-Konzentration in Materialien, der Radon-konzentration in der Raum- und Bodenluft sowie zur Messung der Radondiffusion und Exhalation existieren verschiedene Methoden. Im Folgenden werden die Methoden beschrieben, die bei den Untersuchungen hauptsächlich eingesetzt wurden.

2.1 Reinstgermanium-Detektoren (HPGe)

Zur Bestimmung des Radionuklidgehaltes der Proben, insbesondere der Aktivitätskonzentration von Radium-226 und Thorium-232, wurden Reinstgermanium-Detektoren der Firma Ortec eingesetzt. Da die Gammastrahlung des Radium-226 nur eine maximale relative Intensität von ca. 3,6% (bei einer Energie von 186.2 keV) und die des Thorium-232 nur 0,3% (63,8 keV) aufweist [37], wurden die Proben in radondichte Folien eingeschweißt und gelagert, bis sich ein radioaktives Gleichgewicht mit den Folgeprodukten eingestellt hatte (ca. 4-5 Wochen). Die Auswertung der Radiumkonzentration erfolgte dann über die Mittelung der Gammalinien des Blei-214 bei 295,2 keV (19,3% rel. Int.), 352,0keV (37,6%), sowie der Gammalinie des Bismut-214 bei 609,3keV (46,1%). Zur Bestimmung der Thoriumkonzentration wurden die Linien des Blei-212 bei 238,6 keV (43,3%) und des Actinium-228 bei 911,2 keV (25,8%) herangezogen.

Die Kalibrierung geschah durch einen Mischnuklidstandard der Firma AEA Technology QSA GmbH, dessen Radionuklidgemisch durch die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) bestimmt wurde.

2.2 Aktivkohledetektoren

Eine passive Methode zur Messung der Aktivitätskonzentration des Radon-222 in Luft stellen die Aktivkohledetektoren dar. Ausgeheizte Aktivkohle kann genügend Radon aufnehmen, sodass die Radon-Aufnahmerate im Bereich der natürlich vorkommenden Innenraum-Konzentrationen konstant bleibt.

Ein Aktivkohledetektor der Marke "Picorad" ist ein spezielles Plastikvial von etwa 6 cm Höhe und 2,6 cm Durchmesser, in dessen oberem Bereich eine poröse Kammer befestigt ist. Diese Kammer ist mit ca. 1,4 g Aktivkohle

und ca. 1,6 g Kieselgel gefüllt. Die Menge des Trockenmittels bindet selbst bei 100 % relativer Luftfeuchtigkeit den Wasserdampf für 24 Stunden, nimmt aber im Gegensatz zur der Aktivkohle kaum Radon auf. Das Vial wird durch einen Schraubverschluss vor und nach der ca. zwei bis drei Tage dauernden Expositionsphase radondicht verschlossen (siehe Abb. 2.1).



Abbildung 2.1: Picorad-Aktivkohledetektoren.

Im Labor werden dann 10 ml einer xylolhaltigen Szintillationsflüssigkeit in das Vial gegeben. Wegen des hohen Dampfdruckes des Xylols wird das Radon innerhalb von 8 Stunden vollständig aus der Aktivkohle desorbiert und auf Grund der guten Löslichkeit des Radons in Xylol gelöst.

Nach dieser Desorptionszeit werden die durch die Alpha- bzw. Beta-Zerfälle des Radons und der Folgeprodukte erzeugten Lichtimpulse in der Szintillationsflüssigkeit spektroskopisch [38] aufgezeichnet. Unter Berücksichtigung der Expositionsdauer und der Zeit zwischen Expositionsende und Auswertebeginn wird die mittlere Radonkonzentration, die während der Exposition herrschte, berechnet [39].

Zur Kontrolle der Ergebnisse wurden Vergleichsmessungen mit Kernspurdetektoren (Kap. 2.3) sowie Expositionen bei bekannten Radonkonzentrationen in der Radonkammer [40] durchgeführt. Die Nachweisgrenze liegt im Allgemeinen bei etwa $5 \, \mathrm{Bq/m^3}$.

Die Messung mittels Picorad entspricht der DIN 25706-2 [41] und wird von der Strahlenschutzkommission (SSK) als geeignetes Messverfahren für Übersichtsmessungen angesehen [42].

Eine weitere Methode, die Radonraumluftkonzentration mit Hilfe von Aktivkohle zu bestimmen, besteht in der Messung der Gammastrahlung der Zerfallsprodukte. Dazu werden flache Blechdosen mit bis zu 200 g Aktivkohle exponiert und im Labor auf einem Gammaspektrometer ausgemessen. Diese Aktivkohledosen wurden im Rahmen dieser Arbeit nicht verwendet.

2.3 Kernspurdetektoren (SSNTD)

Bei diesem Typ von passiven Detektoren (Solid State Nuclear Track Detektors, SSNTD) werden die Strahlungsschäden, die der Alphazerfall des Radons in einer Kunststofffolie hinterlässt, zur Auswertung herangezogen. Als Folie wird eine Biphenyl-A-Policarbonatfolie der Marke MAKROFOL der Firma Bayer verwendet, die in einem Kunststoffgehäuse von ca. 4,5 cm Durchmesser montiert ist (Typ F des Forschungszentrum Karlsruhe, Abb 2.2). Die Folie ist mit einer 2 μ m dicken, aluminiumbeschichteten Mylarfolie bezogen, die eine ungleichmäßige elektrostatische Aufladung der MAKROFOL-Folie verhindert. Ein zusätzlicher Filter hält Aerosole, Feuchtigkeit und damit auch die an ihnen angelagerten Zerfallsprodukte zurück. Die Expositionsdauer erstreckt sich typischerweise über mehrere Monate.



Abbildung 2.2: "Karlsruher" Kernspurdetektoren.

Auftreffende Alphateilchen zerstören auf ihrer Bahn die Polymerketten des Kunststoffes und erzeugen eine latente Kernspur. Da die entstandenen primären und sekundären Reaktionsprodukte innerhalb des Kunststoffes nur eine geringe Beweglichkeit haben, ist die entstandene Kernspur über längere Zeiträume stabil.

Nach der Exposition werden die nur wenige Nanometer großen Spuren durch drei zum Teil elektrochemische Ätzvorgänge vergrößert. Als Lösung wird eine Mischung aus 6,5-molarer Kalilauge und Ethanol verwendet. Die vorhandenen Hydroxylionen lösen die C-O-Bindungen im Polymer, während die entstehenden Kettenbruchstücke vom Alkohol gelöst und abtransportiert werden.

Die Messung mittels Kernspurdetektoren entspricht der DIN 25706-1 [43] und wird von der SSK als geeignetes Messverfahren für Übersichts- und Bewertungsmessungen angesehen [42].

Durch manuelles oder rechnergesteuertes Auszählen der Ätzspuren (Abb. 2.3) unter einem Mikrofiche-Lesegerät oder einem Diascanner kann dann die

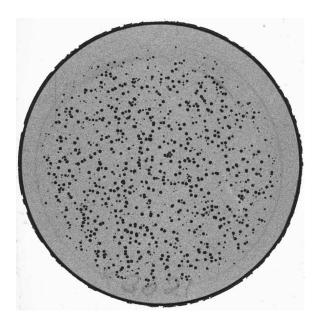


Abbildung 2.3: Geätzte Folie eines Kernspurdetektors.

mittlere Radonkonzentration während der Expositionszeit bestimmt werden. Zur automatischen Bestimmung der Exposition wurde von jeder Folie mittels Diascanner ein 1 cm x 1 cm großer Ausschnitt digitalisiert. Alle Aufnahmen wurden nacheinander in dem Public-Domain Bildverarbeitungsprogramm "NIH Image", das an dem U.S. National Institutes of Health (NIH) [44] entwickelt wurde, bearbeitet. (Das Macro befindet sich in Anhang 9.3.) Als erster Schritt wurde mit einem sog. "Threshold"-Filter (Bildpunkte mit Grauwerten oberhalb eines Schwellenwertes werden schwarz, unterhalb des Schwellenwertes weiß) das Grauwertebild in ein 1-bit-Schwarzweissbild umgewandelt. Danach wurde von allen schwarzen Bereichen ein 1 Pixel großer Rand abgezogen ("Erosion"), wodurch das Rauschen des Bildes verringert wurde und die Kernspuren deutlicher hervortraten. Zur Bestimmung der Spurenzahl in der gescannten Fläche wurde die mittlere Dichte (relative Anzahl der schwarzen Bildpunkte) des so bearbeiteten Bildes verwendet. Versuche, rechnergesteuert direkt die Spurenzahl zu ermitteln, führten nicht zu dem erhofften Erfolg, da die Trennung von sich überlappenden Spuren problematisch war.

Die Kalibrierung erfolgte über die Exposition der Detektoren bei einer bekannten Konzentration in der Radonkammer [40] und manueller Auszählung und wurde durch Vergleichsmessungen des National Radiological Protection Board (NRPB) [45, 46, 47, 48, 49] verifiziert (Abb. 2.4) Zur Berechnung der Spurenzahl N in Abhängigkeit der mittleren Dichte $\bar{x} \in [0, 255]$ des Folienbildes wurden bei der Kalibrierung folgende Faktoren ermittelt:

$$N = \begin{cases} 13, 3 \cdot \bar{x} & : \ \bar{x} < 75 \\ 22, 1 \cdot \bar{x} - 650 & : \ \bar{x} \ge 75 \end{cases}$$

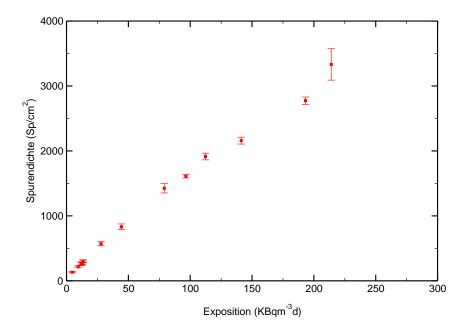


Abbildung 2.4: Kalibrierung der Kernspurdetektoren.

Aus der Anzahl der Spuren wurde die Exposition in $kBqm^{-3}d$ mittels

Exposition =
$$\begin{cases} N/22 &: N < 1000 \\ N/17 &: N < 2000 \\ N/15 &: N \ge 2000 \end{cases}$$

bestimmt. Bei einer mittleren Dichte von 30 errechnet sich so eine Spurenzahl von ca. 400 Spuren, die einer Exposition von $18,25~\mathrm{kBqm^{-3}d}$ entspricht. Bei einer Expositionszeit von einem Jahr ergibt dies eine mittlere Radonkonzentration von $50~\mathrm{Bqm^{-3}}$.

2.4 Radonexhalation und -emanation

Die Messung der Exhalationsraten des Radon-222 und Radon-220 erfolgt durch das Aufbringen eines Messvolumens auf die exhalierende Fläche und die zeitabhängige Messung der Radonkonzentration innerhalb dieses Volumens [50]. Die Radonkonzentration wird durch die elektrostatische Abscheidung der bei der Umwandlung von Radon entstehenden positiven Polonium-218- bzw. Polonium-216-Ionen auf der Oberfläche eines Oberflächensperrschichtdetektors mit anschließender Alphaspektrometrie bestimmt [51, 52, 53]. Im Falle von Polonium-218 liegt der Anteil der einfach ionisierten Atome bei etwa 88%. Zur Bestimmung der Exhalationsraten wurden, je nach Einsatzbedingungen, selbstgefertigte Messgeräte oder ein mitentwickeltes, kommerziell erhältliches Messgerät (Tracerlab ERS-1, [54]) verwendet (Abb. 2.5).



Abbildung 2.5: Das kommerziell erhältliche ERS-1 und die Messsonde eines selbstgebauten Exhalationsmessgerätes.

Das Messvolumen besteht aus einer Aluminium-Halbkugel mit einem Volumen von ca. 5 l, die mit Dichtungslippen auf die Probe aufgesetzt wird. An diese Halbkugel wird eine gegenüber dem Oberflächensperrschichtdetektor positive Hochspannung von 1,5-3 kV angelegt. Zur Homogenisierung des elektrischen Feldes und damit zur Verbesserung der Abscheidecharakteristik auf der Halbkugel-Unterseite wurde ein metallisches Gitter angebracht.

Nach Aufbringen der Anordnung auf die zu messende Probe und Einschalten der Hochspannung, wird ein Teil der aus dem Probenmaterial in die Messkammer exhalierten und durch den Zerfall in ihre Folgeprodukte Polonium-218 bzw. Polonium-216 umgewandelten Radonatome sofort durch das elektrische Feld auf dem auf Erdpotential liegenden Oberflächensperrschichtdetektor abgeschieden. Der weitere Zerfall der abgeschiedenen Folgeprodukte wird nun alphaspektrometrisch erfasst. Die Radonexhalation wird über den zeitlichen Anstieg der Konzentration in dem Messvolumen bestimmt (Abb. 2.6).

Abbildung 2.7 zeigt ein typisches α -Spektrum. Neben den 218 Po- und 216 Po-Peaks findet man noch die Aufbaupeaks von 214 Po und 212 Po, sowie bei einem Einsatz des Detektors über Jahre hinweg, auch den Aufbaupeak von 210 Po, der bei einer Energie von etwa 5,3 MeV liegt.

Die Kalibrierung geschah durch die Exposition der Messhalbkugeln bei bekannter Radonkonzentration in der Radonkammer.

Ein Vorteil dieser Untersuchungsmethode ist die sehr hohe Nachweisgenauigkeit für Radon. Durch die zeitliche Auflösung der Messung kann der Verlauf der Radonkonzentration innerhalb der Messanordnung verfolgt werden. Die Radon-222-Konzentration steigt zu Anfang der Messung nahezu linear an, um sich dann asymptotisch einem Sättigungswert zu nähern. Dieser Sättigungswert ist dann

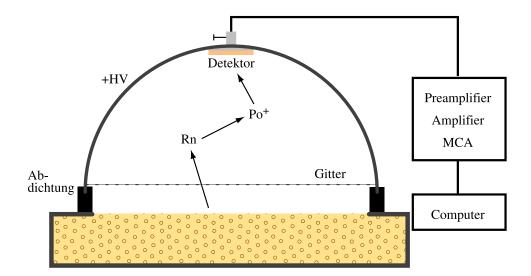


Abbildung 2.6: Prinzip der Exhalationsmessung.

erreicht, wenn die Konzentration im Exhalationsvolumen gegenüber der Radon-konzentration in den Poren des zu untersuchenden Materials nahezu gleich ist. Die Dauer des linearen Bereiches und damit der Zeitpunkt, in dem der Sättigungswert erreicht wird, ist von Probe zu Probe unterschiedlich und à priori unbekannt. Deswegen ist es wichtig, diesen zeitlichen Verlauf aufzunehmen. Ei-

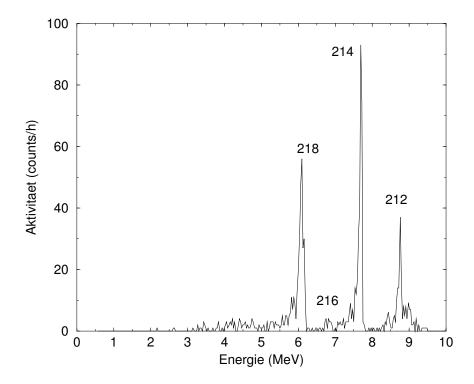


Abbildung 2.7: Typisches α -Spektrum während der Exhalationsmessung. Die Zahlen an den Peaks geben die Masse der zerfallenden Polonium-Isotopen an.

ne einmalige Messung zu einem bestimmten Zeitpunkt bzw. eine über einen Zeitraum mittelnde Messung [55, 56] reicht zur Bestimmung der Exhalationsrate nicht aus. Auf Grund der kurzen Halbwertszeit ist die Konzentration des Radon-220 sofort im Sättigungsbereich. Zur Auswertung wird der Mittelwert der Konzentration herangezogen.

Um Randeffekte, d.h. den Verlust von Radon durch die seitliche Exhalation außerhalb der Messglocke, zu vermeiden, werden je nach üblichem Einsatz der Materialien, freie Flächen der Probe mit Silikon oder einer radondichter Folie abgedichtet. Dies ist besonders bei hochporösen Materialien notwendig. Ist die Probe normalerweise in einer Wand verbaut und die Diffusionslänge des Radons in der Größenordnung der Probendimension, so sind die Seitenflächen abzudichten. Handelt es sich bei der Probe um ein teil einer gegen Feuchtigkeit isolierte Kellerwand, so ist auch die Rückseite der Probe abzudichten. Generell sollte man darauf achten, dass die Probe so präpariert wird, dass es dem realen Einsatz möglichst entspricht. Ist dies nicht ohne weiteres möglich, kann durch eine größtmögliche Abdichtung der Probe ein "worst case" bestimmt werden.

Die Nachweisgrenze für Exhalationsraten beträgt für die Radon-222 Exhalationsrate bei zehn Zyklen von je 3000s etwa $0.02\,\mathrm{mBqm^{-2}s^{-1}}$. Für Radon-220 liegt die Nachweisgrenze bei $20\,\mathrm{mBqm^{-2}s^{-1}}$. Der mittlere gesamte Messfehler ist im Allgemeinen kleiner als $10\,\%$.

Zur Bestimmung der Emanationsraten wurde die Exhalationsmessung für Pulverproben angepasst. Der schematische Aufbau der Messapparatur zeigt Abb. 2.8. Als Probenbehälter dient eine Glasschale, auf der die Messhalbkugel aufgebracht wird. Dichtungen aus Moosgummi verhindern eine größere Leckrate, erlauben andererseits einen einfachen Probenwechsel. Das zu untersuchende Pulver wurde in einer Schichtdicke von max. 7 mm in die Schale geschüttet.

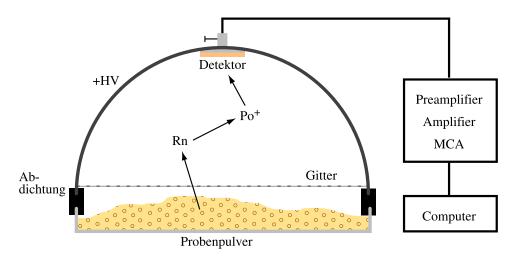


Abbildung 2.8: Prinzip des Messaufbaus.

Kalibrierungsmessungen in der Radonkammer zeigten, dass die Messanordnung eine Effizienz von 0,127 Impulse pro Zerfall besitzt. Die Öffnung der Messkammer ist etwa $0,049\,\mathrm{m}^2$ groß, der Inhalt etwa $5,14\cdot10^{-3}\,\mathrm{m}^3$. Um das Verhältnis zwischen freier und gebundener Exhalation laut Gl. (4.20) abzuschätzen,

wurde eine mittlere Luftsäule von $l=14\cdot 10^{-2}$ m sowie eine Pulverhöhe von $d=7\cdot 10^{-3}$ m angenommen. Für $\beta=1$ m⁻¹, d.h. einer Diffusionslänge im Pulver von einem Meter, einer Porösität $\epsilon\leq 1$ sowie der relativen Leckrate $\gamma\geq 1$ erhält man maximal

 $\frac{\Phi_{l\to\infty}}{\Phi_l} \le 1 + 0.05 = 1.05.$

Da in der verwendeten Messapparatur die relative Leckrate $\gamma \approx 5$ (siehe Kap. 5.1), liegt der Fehler bei etwa 1% und damit kleiner als der Gesamtfehler der Exhalationsmessung.

2.5 Radondiffusion

Um die Diffusionskoeffizienten des Radon-222 in poröser Materialien zu bestimmen, wird die Probe auf einen nach oben offenen Behälter gelegt und abgedichtet. Von einer trockenen Radium-226-Quelle wird Radon in diesen Behälter gepumpt. Die Radonkonzentration innerhalb dieses Behälters wird - analog zur Exhalationsbestimmung - alphaspektroskopisch mittels Oberflächensperrschichtdetektor bestimmt. Nachdem sich ein konstanter Konzentrationsgradient zwischen der Luft im Behälter und der freien Seite der Probe eingestellt hat, kann die Aktivitätsflussdichte zur freien Seite hin über die Methode zur Bestimmung der Exhalationsrate gemessen werden (Abb. 2.9).

In der dargestellten Messanordnung kann das in der Probe produzierte Radon gegenüber der sehr hohen Radonkonzentration im Reservoirvolumen von über $100~\mathrm{kBq/m^3}$ vernachlässigt werden. Unter "steady state"-Bedingungen¹ erhält man aus dem 2. Fick'schen Gesetz die folgende eindimensionale Diffusionsgleichung:

$$\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c(x,t)}{\partial x^2} - \lambda c(x,t) = 0, \qquad (2.1)$$

mit D= Porendiffusionskoeffizient (m 2 s $^{-1}$), c(x,t)=c(x)= Radonkonzentration in der Probe (Bqm $^{-3}$), $\lambda=$ Zerfallskonstante des Radon-222 (s $^{-1}$). Mit den Randbedingungen einer konstanten Radonkonzentration im Reservoir $c(x=0)=c_{res}$ (Bqm $^{-3}$) und einer näherungsweise konstanten mittleren Radonkonzentration im Messvolumen $c(x=d)=c_{mea}$ (Bqm $^{-3}$), erhält man für $0 \le x \le d$ als Lösung:

$$c(x) = \frac{1}{2\sinh(\beta d)} \left[\left(c_{mea} - c_{res}e^{-\beta d} \right) e^{\beta x} + \left(c_{res}e^{\beta d} - c_{mea} \right) e^{-\beta x} \right]$$
 (2.2)

mit d= Dicke der Probe (m) und $R=1/\beta=(D/\lambda)^{1/2}=$ Diffusionslänge (m). Mit dem 1. Fick'schen Gesetz

$$\Phi = -D\epsilon \frac{\partial c(x)}{\partial x},\tag{2.3}$$

 Φ = Radon-Exhalationsrate (Bqm⁻²s⁻¹) und ϵ = Effektive Porosität des Material erhält man – durch Einsetzen von Gl. 2.2 in Gl. 2.3 und Auflösen nach D

 $^{^1\}mathrm{Diese}$ Annahme ist analog zur Exhalationsmessung nur unter gewissen Bedingungen gültig. Siehe dazu die Fußnote auf Seite 41

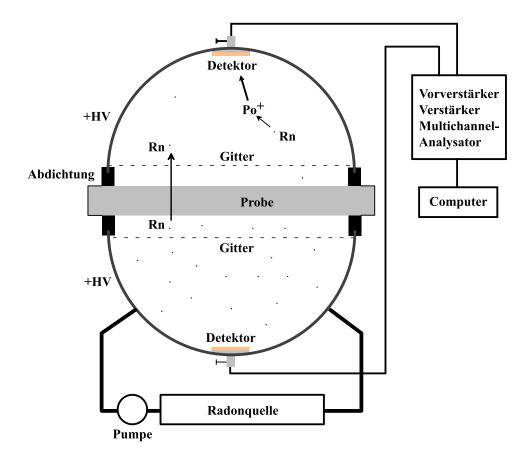


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung der Messanordnung zur Bestimmung des Radon-Diffusionskoeffizienten

– den Diffusionskoeffizienten in folgender Form:

$$D = \frac{\Phi \sinh(\beta d)}{\beta \epsilon \left(c_{res} - c_{mean} \cosh(\beta d)\right)}.$$
 (2.4)

Gleichung 2.4 ist transzendent in D und wird numerisch gelöst.

Der Diffusionskoeffizient D ist von der Dicke d des Materials unabhängig. Über die Zerfallskonstante λ kann der Diffusionskoeffizient D mit der Diffusionslänge (Relaxationsentfernung) R verknüpft werden; es gilt: $R^2 = D/\lambda$.

Wie bei der Bestimmung der Radonexhalation müssen auch hier zur Vermeidung seitlicher Diffusion die offenen Flächen poröser Materialien abgedichtet werden.

Eine Norm, wann ein Material als radondicht bezeichnet werden kann, existiert nicht. Es hat sich eine Konvention durchgesetzt, nach der ein Material als relativ radondicht bezeichnet werden kann, wenn seine Dicke mindestens der dreifachen Diffusionslänge entspricht. In diesem Fall werden mehr als 95 % des Radons im Material zurückgehalten.

Bei üblichen Dicken der Probenkörper von einigen Millimetern können mit dieser hochempfindlichen Messanordnung noch Diffusionskoeffizienten von $D \approx 10^{-14} \,\mathrm{m}^2\mathrm{s}^{-1}$ bestimmt werden (bei Dicken im cm-Bereich ist $D \approx 10^{-12} \,\mathrm{m}^2\mathrm{s}^{-1}$).

Bei kleineren Diffusionskoeffizienten, die nicht mehr nachweisbar sind, kann rechnerisch nur eine Mindestdicke angegeben werden, bei der das Material noch als radondicht angesehen werden kann [24].

2.6 Bodenluftmessung

Zur Bestimmung der Radonkonzentration in der Bodenluft wurde das "Markus 10" der schwedischen Firma Gammadata Mätteknik AB eingesetzt, welches die Bodenluft aus einer gewissen Tiefe ansaugt und durch das Abscheideverfahren ausmisst. Dazu wird ein innen hohler Metallstab etwa 1 m tief in den Boden geschlagen. Auf den Stab wird eine Abscheide-Vorrichtung für Bodenfeuchtigkeit sowie die Mess- und Auswerteeinheit aufgeschraubt. Die Messund Auswerteeinheit besteht aus einer kleinen Pumpe, die die Bodenluft mit 1,8 l/s durch den Stab in eine Messkammer einsaugt. Ein Drucksensor regelt die Laufzeit der Pumpe, so dass immer eine Mindestmenge von Luft gepumpt wird. Durch den Zerfall des in der Bodenluft enthaltenen Radon-222 entstehen in der Messkammer positiv geladene Polonium-218-Ionen, die elektrostatisch auf einen Oberflächensperrschichtdetektor abgeschieden werden. Der Zerfall der Polonium-Ionen wird detektiert und aus der Zerfallsrate die Radonkonzentration in der Bodenluft bestimmt. Die Messdauer beträgt ca. 10 Minuten. Nach ca. 20 Minuten (> 6 Halbwertszeiten des Polonium-218) ist das Gerät wieder messbereit.

Die Messgenauigkeit liegt laut Herstellerangabe bei Bodenluftkonzentrationen von $10 \,\mathrm{kBq/m^3}$ bei ca. $20 \,\%$ und bei $50 \,\mathrm{kBq/m^3}$ bei ca. $10 \,\%$.

Pro untersuchtem Grundstück wurden jeweils mehrere Messpunkte ausgewählt und mehrere Messungen pro Messpunkt durchgeführt. Als Ergebnis pro Messpunkt bzw. pro zur untersuchenden Objekt wurde der maximale gemessene Wert, der eine untere Grenze der tatsächlich vorliegenden Radonkonzentration im Boden darstellt, gewertet.

Bei stark zerklüfteten, felsigen oder mit Bodenfeuchte gesättigten Boden kann es zu ungenauen Messungen kommen. Bei zerklüftetem Boden ist der Tiefenbereich, aus dem die Luft angesaugt wird, unbestimmt. Im Falle mit Wasser gesättigtem Boden reicht unter Umständen die Pumpleistung nicht aus, die benötigte Luftmenge anzusaugen.

Eine Untersuchung über die Einflüsse von Wetter und Bodenbeschaffenheit auf den Radontransport im Boden findet sich z.B. in [57].

Kapitel 3

Radonmigrationsuntersuchungen

3.1 Ziel und Überblick

Viele der Untersuchungen wurden im Rahmen des finanziell vom Bundesamt für Strahlenschutz geförderten Forschungsvorhaben "Untersuchungen der Durchlässigkeit genormter Baustoffe und Bauwerksabdichtungen gegen Radon aus dem Baugrund" (StSch 2415) durchgeführt. Das Ziel des Forschungsprojektes [25] war das Erlangen eines besseren Verständnisses über die Vorgänge und Abläufe beim Übertritt von Radon aus dem Baugrund durch die Kellerwände und die Bodenplatte in die Häuser. Es sollte eine Evaluierung der normgerechten Abdichtung von bodenberührenden Bauwerkteilen gegen Feuchtigkeit auf Radondurchlässigkeit und damit auf die Radonkonzentration im Haus durchgeführt werden. Hierzu wurden insbesondere Untersuchungen der Radondurchlässigkeit von Materialproben im Labor und von Kellerbereichen bestehender Häusern durchgeführt. Um neben den Labormessungen an Materialproben auch den Einfluss der Verarbeitung an den Bauwerken zu untersuchen, wurde eine Modellhausecke unter möglichst realistischen Bedingungen aufgebaut. Des Weiteren sollte eine maximale Radonkonzentration in der Bodenluft ermittelt werden, bei der übliche Materialien und Verbunde in einem bis zur Geschossdecke erdberührenden Keller und einer Luftwechselrate von 0,4 h⁻¹ eine Radonkonzentration von weniger als 250 Bq/m³ gewährleisten.

3.2 Exhalations- und Diffusionsmessungen an Proben

Die Ergebnisse ausgewählter Diffusions- und Exhalationsmessungen an Baustoffen sind im Anhang in Tabelle 9.5 (Seite 100) und 9.6 (Seite 101) zusammengefasst. Für Baustoffe wurden Diffusionslängen zwischen $60 \cdot 10^{-3}$ m und $1100 \cdot 10^{-3}$ m gemessen, für modifizierte Baustoffe zwischen $<0,7 \cdot 10^{-3}$ m und $650 \cdot 10^{-3}$ m, für Anstriche und Schlämme zwischen $<0,7 \cdot 10^{-3}$ m und $200 \cdot 10^{-3}$ m und für Dichtungsbahnen lagen die Werte zwischen $<0,7 \cdot 10^{-3}$ m und $30 \cdot 10^{-3}$ m

[25].

Normale Baustoffe sind in der üblichen Dicke nicht radondicht. Erst wenn die Baumaterialien mit kunststoffhaltigem oder porenverschließendem Zusatz modifiziert werden, wird in einigen Fällen Radondichtheit erreicht. Während dünne Anstriche meist nicht radondicht sind, halten dick aufgebrachte Anstriche (z.B. Bitumendickbeschichtungen), Schlämme und Dichtungsbahnen (z.B. aus Polyethylen hoher Dichte (PEHD) oder bitumenbeschichteten Folien) meistens das Radon zurück. Auf einige besondere Proben soll im Folgenden näher eingegangen werden.

3.2.1 CEM I - III

Bei diesen Proben handelte es sich um insgesamt neun Betonplatten der Ausmaße 40 x 40 x 5 cm³, jeweils drei mit Portland- (CEM I), Portlandhütten- (CEM II/B-S) und Hochofenzement (CEM III/A) mit Wasserzementwert w/z von 0,4, 0,5 und 0,6. Die Diffusionskonstanten, Exhalationsraten und Porositäten in Abhängigkeit von w/z zeigen die Abbildungen 3.1 bis 3.3. Die Radium- und Thoriumaktivitätskonzentration wurde gammaspektroskopisch ermittelt und betrugen nur 3 – 4 Bq/kg für 226 Ra und 4 – 5 Bq/kg für 232 Th. Mit zunehmendem Wasserzementwert steigt sowohl die Diffusionskonstante (Abb. 3.1) als auch die Exhalationsrate (Abb. 3.2) an.

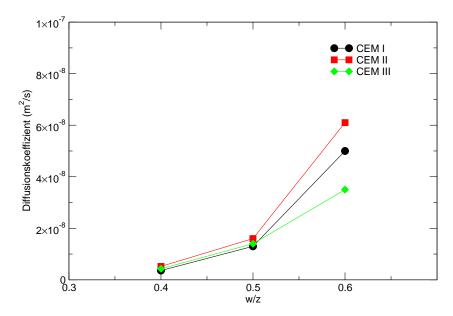


Abbildung 3.1: Diffusionskoeffizienten von Betonplatten in Abhängigkeit des Wasserzementwertes.

Da die Radium- und Thoriumkonzentrationen sich nur gering unterscheiden, liegt dieser Effekt an der generellen Zunahme der effektiven Porosität, d.h. dem Anteil des mit der Oberfläche verbundenen Porenvolumens am Gesamtvolumen, der Proben (Abb. 3.3). Ein höheres Verhältnis von Wasser zu Zement führt nach dem Aushärten des Zementes zu einem größeren Überschuss an Porenwasser.

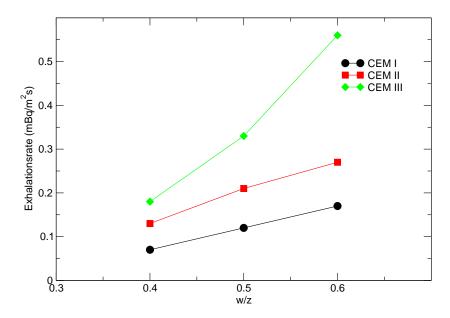


Abbildung 3.2: Exhalationsrate von Betonplatten in Abhängigkeit des Wasserzementwertes.

Nach dem Verdunsten des Wassers bleibt ein größeres Porenvolumen, welches zur Migration des Radons zur Verfügung steht, übrig.

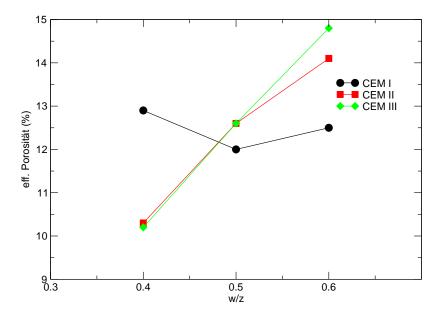


Abbildung 3.3: Effektive Porosität von Betonplatten in Abhängigkeit des Wasserzementwertes.

Die ermittelten Diffusionslängen sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Bei einer typischen Kellerbodenplatte einer Dicke von ca. 200 mm sollte die Diffusionslänge nicht über 70 mm betragen, um als "radondicht" gemäß dem Kriterium, dass die Dicke mindestens dreimal größer als die Diffusionslänge beträgt, zu gelten.

Art	Diff.länge
	(mm)
CEM I, w/z 0,4	42
CEM I, $w/z = 0.5$	79
CEM I, $w/z 0.6$	155
CEM II, $w/z 0.4$	50
CEM II, $w/z = 0.5$	87
CEM II, $w/z 0.6$	171
CEM III, $w/z = 0.4$	45
CEM III, $w/z = 0.5$	81
CEM III, w/z 0,6	130

Tabelle 3.1: Gemessene Diffusionslängen der untersuchten Betonplatten.

Man sieht, dass nur die Proben mit dem niedrigsten Wasserzementwerten dieses Kriterium erfüllen.

3.2.2 Polymerverdichteter Beton

Der kunststoffmodifizierte Trockenbeton PCC BE 0/8 bzw. BE 0/4 ist in der üblichen, am Bau verwendeten Dicke, ausreichend radondicht. Dieser Beton, der als Beschichtung von Betonuntergründen wie z. B. als Ausgleichsschicht im Brückenbau oder im Industriebereich bei erhöhten Anforderungen sowie als Brandschutzbeton verwendet wird, ist allerdings aus Kostengründen für den gewöhnlichen Hausbau wenig geeignet.

3.2.3 Dichtungsbahnen aus Kunststoff

Diese Folien werden am Bau normalerweise zum Schutz der Feuchteisolierung gegenüber mechanischen Einwirkungen und als zweite, feuchteundurchlässige Schicht verwendet. Allerdings werden ein Teil diese Folien von der Herstellerfirma mittlerweile explizit als Radon- oder Methansperre angeboten. Sie bestehen aus ein oder mehreren Lagen Polyethylen, wobei man zwischen Polyethylen niederer (PELD) und hoher Dichte (PEHD) unterscheidet.

Die gemessenen PEHD-Bahnen, bekannt als "Noppenbahnen", waren überwiegend radondicht. Allerdings gab es auch eine Ausnahme. Dagegen hat sich gezeigt, dass die gemessenen reinen PELD Folien, auch als Mehrschichtsysteme, deutlich nicht radondicht waren. Nur die Abdichtfolie, die aus einer PELD/Aluminium/PELD-Schichtsystem besteht, zeigte eine ausreichende Radondichtigkeit.

Die Folienbahnen werden üblicherweise mittels einer 3 cm breiten Butyl-Bahn überlappend zusammengeklebt. Die Dichtheit dieser Klebung konnte bei der PELD/Al/PELD-Bahn untersucht werden. Mit einer Diffusionslänge von etwa 8 mm ist die Klebung als radondicht anzusehen.

3.2.4 Dichtungsbahnen aus Bitumen

Eine generelle Aussage über die Dichtheit der Produktgruppe konnte nicht erfolgen. Zwei von vier gemessenen Proben waren radondicht. Zur Beurteilung von Vertreter dieser Materialgruppe ist eine individuelle Messung notwendig.

3.2.5 Kunststoffmodifizierte Bitumendickbeschichtungen

Wie beiden Dichtungsbahnen aus Bitumen zeigte sich bei den Bitumendickbeschichtungen ein uneinheitliches Bild. Bei einigen Proben konnte kein Radonfluss gemessen werden, andere Proben stellten sich mit Diffusionslängen von über 30 mm als hoch radonpermeabel heraus. Zur Beurteilung von Vertreter dieser Materialgruppe ist auch hier eine individuelle Messung notwendig.

3.2.6 Sonstige Baustoffe

Glasschaumplatten werden als Perimeterdichtung an den Kellerwänden oder als Bodendämmung unterhalb der Bodenplatte verwendet. Die untersuchten Glasschaumplatten waren als radondicht einzustufen. Interessant waren allerdings die Fugen zwischen zwei Platten. Waren die Stoßfugen mittels Polymerharz verklebt, konnte noch eine nennenswerte Diffusion gemessen werden und die isolierende Wirkung war nicht ausreichend. Mit Bitumen verklebte Platten waren dagegen radondicht.

Rohre aus PVC oder PP sind radondicht, können somit als Teil eines Erdwärmetauscher verwendet werden. Auch hier sind die Fugen an den Verbindungen einzelner Rohrstücke problematisch.

3.3 Messungen an einer Modellhausecke

Die Laborproben wurden von den Firmen speziell für die Untersuchungen vorbereitet. Wie sich die Materialen am Bau verhalten und wie sich die Verarbeitung auswirkt, sollte modellhaft untersucht werden. Zu diesem Zweck wurden drei Modellhausecken mit unterschiedlichem Mauerwerk aufgebaut und gegen Feuchtigkeit mit unterschiedlichen Materialien isoliert. Der Aufbau sollte einer Ecke entsprechen, um speziell die Überlappungs- und Fugenbereiche zu untersuchen.

3.3.1 Betonplatte

Für die Bestimmung der Radondurchlässigkeit an der Modellhausecke wurde eine $150 \times 150 \times 20 \text{ cm}^3$ große Betonplatte (B 25/032) mit Armierung gegossen. Sie steht auf Betonbeinen, so dass unter der Platte eine Radonquelle gasdicht befestigt werden kann und so der Radondurchtritt messbar ist. Die Platte wurde

21 Tage nach dem Gießen geliefert und zum Schutz vor Witterungseinflüssen in eine beheizte Garage gestellt. Eine sofortige Exhalationsmessung über 72 Zyklen à einer Stunde ergab eine Rate von 0,05 mBq/m²s. Eine zweite, daran anschließende Exhalationsmessung zeigte eine auf 0,10 mBq/m²s erhöhte Exhalationsrate. Bei einer dritten, ca. acht Wochen später erfolgten Messung hatte sich die Exhalationsrate auf 0,60 mBq/m²s erhöht. Der gleiche Trend konnte auch bei den durchgeführten Diffusionsmessungen beobachtet werden. Dazu wurde unterhalb der Platte ein Radonreservoir angebracht, das durch ein Radiumpräparat mit einer konstanten Radonkonzentration von $\approx 22~\mathrm{kBq/m^3}$ versorgt wurde. Der Diffusionskoeffizient wuchs innerhalb der acht Wochen nach dem Anliefern von 0,73·10⁻⁸ m²/s auf 0,80·10⁻⁸ m²/s an. Dies entspricht einem Anstieg der Diffusionslänge von 6 auf 10 cm.

3.3.2 Mauerwerk

Auf diese Betonplatte wurden nacheinander eine Ecke aus Kalksandstein, Poroton und aus Liaporsteinen gemauert. Die Mauern waren jeweils 36,5 cm stark und mit unterschiedlichen vertikalen Feuchteisolierungen angebracht (Abb. 3.4). Zwischen Betonplatte und erster Steinschicht wurde eine Schweißbahn (V60S4) der Dicke 4 mm aufgeschweißt. Zwischen erster und zweiter Steinreihe wurde als zweiter horizontale Abdichtungsebene eine PE-Mauerisolierfolie eingebaut, die zwischen der ersten Mauerschicht und dem Mörtel der zweiten liegt. Da diese Folie nur 24 cm breit ist, kommt es zu einem Überlappung von 11,5 cm.

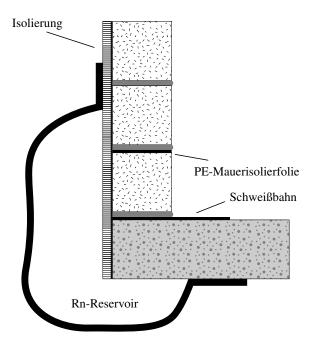


Abbildung 3.4: Aufbau der Modellwand.

Von jeder Mauer wurde vor und nach der Isolierung der Diffusionskoeffizient bestimmt. Dabei musste jeweils das vollständige Austrocknen der verwendeten

Mauersteine und des Mörtels abgewartet werden. Tabelle 3.2 zeigt die gemessenen Diffusionskoeffizienten und die dazugehörigen Diffusionslängen.

Steine	Mörtel	Isolierung	Diff.	Diff.
			Koeffizient	Länge (m)
			$(10^{-8} \text{m}^2/\text{s})$	
Kalksandstein	MG II		3,2	12,4
12 DF				
Kalksandstein	MG II	Flex. Dich-	2,3	10,6
12 DF		tungsbahnen		
		G200S4		
Poroton T 16-	LM 36		270	114
12 DF				
Poroton T 16-	LM 36	1 komp. Dick-	1,7	9,0
12 DF		beschichtung		
Liaporstein 12	WDM LM 36		380	135
DF				
Liaporstein 12	WDM LM 36	2 komp. Dick-	1,5	8,5
DF		beschichtung		

Tabelle 3.2: Diffusionskonstanten und -längen unterschiedlicher Wände.

Die im Vergleich zur Kalksandsteinwand hohen Diffusionslängen der unisolierten Poroton- und Liaporsteinwand lassen sich durch eine übliche Baumethode erklären, bei der die Stoßfugen nicht vermörtelt werden. (Abb. 3.5). Dadurch kann das Radon nahezu ungehindert durch die profilierten Stoßfugen eintreten. Im Gegensatz dazu sind die Stoßfugen der Kalksandsteine glatt und werden vollständig vermörtelt. Dies schlägt sich auch in der geringen Diffusionslänge nieder.



Abbildung 3.5: Stoßfugen einer Poroton- und einer Liaporwand.

3.3.3 vertikale Isolierung

Die Bitumenschweißbahn mit Glasgewebeeinlage G200S4, die als Feuchteisolierung auf der Kalksandsteinwand aufgebracht wurde, besitzt einen Diffusionskoeffizienten von $5.3 \cdot 10^{-8} \,\mathrm{m}^2/\mathrm{s}$, entsprechend einer Diffusionslänge von 15.9 cm. Bei einer Dicke von 4 mm ist sie somit ebenfalls nicht als radondicht zu bezeichnen. Da einerseits die Diffusionslänge der unisolierten Kalksandsteinmauer schon relativ klein ist und andererseits die Bitumenschweißbahn nur eine geringe radonhemmende Wirkung zeigt, ist der Einfluss der Isolierung nur gering.

Bei den Bitumendickbeschichtungen trat der umgekehrte Fall ein. Die einkomponentige Dickbeschichtung ist eine flexible Kunststoff-Bitumenbeschichtung, die außer zur Abdichtung von Kelleraußenwänden auch zur Isolierung von Terrassen und Kellerböden unter dem Estrich verlegt werden kann. Die zweikomponentige Kunststoff-Bitumendickbeschichtung kann auch bei drückendem Wasser eingesetzt werden. Beide Beschichtungen bewirkten eine Reduzierung des Diffusionskoeffizienten der Mauer um 2 Größenordnungen.

3.3.4 horizontale Isolierung

Labormessungen an den horizontalen Dichtungsbahnen zeigten, dass diese radonpermeabel sind. Die Diffusionskonstante der Schweißbahn V60S4 wurde zu $3.6\cdot10^{-8}$ m²/s, entsprechend einer Diffusionslänge von 13.1 cm, bestimmt. Die PE-Folie war so radonpermeable, dass eine Bestimmung der Diffusionslänge nicht möglich war. Beide Materialien mindern den vertikalen Radontransport innerhalb der Mauer nicht. Da sie horizontal im Mauerwerk eingebracht sind, haben sie keine Auswirkungen auf den horizontalen Radontransport (Abb. 3.4).

3.3.5 Abschätzung der Innenraumkonzentration

Aus der Aktivitätsflussdichte, die bei der Bestimmung der Diffusionskoeffizienten gemessen wird, lassen sich eine zu erwartende Innenraumkonzentration abschätzen. Wenn man annimmt, dass der Radontransport durch alle Wände des Raumes konstant ist und ein Teil des einströmenden Radons durch einen Luftaustausch wieder verloren geht, kann man potentielle Innenraumkonzentration abschätzen zu

$$C_{Rn} \approx \Phi \cdot S \cdot \mu,$$
 (3.1)

mit Φ der Aktivitätsflussdichte, S dem Verhältnis Oberfläche zu Volumen eines Raumes (typ. Wert 2 m⁻¹) und ν der Luftwechselrate (0,4 h⁻¹).

Da die somit ermittelte Innenraumkonzentration von dem von außen angebotenen Radon abhängt, kann man zur Bewertung der Hauskonstruktion das Verhältnis zwischen Innenraumkonzentration und angebotenen Radonkonzentration bestimmen. Dieser "Radontransferfaktor" [58], angegeben in Promille, gibt also an, welcher Anteil der Bodenluft in die Innenluft eines Hauses gelangen kann

Für die untersuchten Wänden wurden Transferfaktoren zwischen 0,1 und 10 % ermittelt. (Tab. 3.3).

Steine	Isolierung	Transferfaktoren (‰)
Kalksandstein		0,5
Kalksandstein	Flex. Dichtungsbahnen G200S4	0,23
Poroton		7
Poroton	1 komp. Dickbeschichtung	0,1
Liaporstein		10
Liaporstein	2 komp. Dickbeschichtung	0,1

Tabelle 3.3: Transferfaktoren der gemessenen Mauerwerke.

3.4 Messungen an realen Häusern

Um die Übertragbarkeit der Messungen an den Laborproben und der Modellhausecken auf fertige Häusern zu überprüfen, wurde versucht, möglichst viele Besitzer nach 1990 gebauten, unterkellerten Ein- und Zweifamilienhäusern in Gebieten mit hoher Radonkonzentration in der Bodenluft für die Messungen zu gewinnen. Die Häuser sollten neuen Baujahres sein, um eine moderne und unbeschädigte Feuchteisolierung zu gewährleisten. Außerdem lag die Vermutung nahe, dass durch die zeitliche Nähe zum Hausbau, die verwendeten Materialien besser bekannt sein sollten. Es sollten die Radonkonzentrationen in den Innenräumen sowie in der Bodenluft in unmittelbarer Nähe zum Haus bestimmt werden. Des Weiteren wurde angestrebt, Exhalationsmessungen an Hinterfüllungsbereichen der Häuser sowie an Kelleraußenwänden bzw. der Bodenplatte, die nicht durch Fliesen o.ä. bedeckt waren, durchzuführen. Die Hausbesitzer sollten über den Aufbau und Besonderheiten der Häuser befragt werden.

Als Untersuchungsgebiet wurde die Kohlebergbauregion um die saarländische Gemeinde Schiffweiler (Abb. 3.6) und die Umgebung der geologisch interessanten Region um die pfälzischen Gemeinde Donsieders (Abb. 3.7), nördlich von Pirmasens, ausgewählt.

Die Radonsituation in Schiffweiler ist aus früheren Untersuchungen sehr gut bekannt [59]. In der Umgebung von Donsieders wurden Werte von ca. 90kBq/m³ in der Bodenluft gefunden. Diese Messungen wurden im Voltzien-Sandstein (Oberer Buntsandstein, Trias) durchgeführt, auf dem sich der Großteil der Gemeinde befindet. Eine Verwerfung erstreckt sich durch den südlichen Teil der Gemeinde, in dem sich auch ein Neubaugebiet befindet. Abbildung 3.7 zeigt die geologischen Gegebenheiten. Der Voltzien-Sandstein ist mit so 2 gekennzeichnet.

Ein Aufruf in der Presse (Abb. 3.8) zeigte einen geringen Erfolg. Nur drei Hausbesitzer aus Schiffweiler waren auf Grund der Veröffentlichung bereit, die Untersuchungen an ihren Häusern durchführen zu lassen. Erst durch persönliches Ansprechen der Hausbewohner in den Neubaugebieten, konnte eine größere Anzahl von Interessenten für die Studie gewonnen werden, deren Häuser die gestellten Kriterien nach Bauform und Alter entsprachen. Es stellte sich heraus, dass der Kenntnisstand über Radon in Schiffweiler sehr groß, dagegen in der Gemeinde Donsieders fast nicht vorhanden ist. Dementsprechend verteilten sich

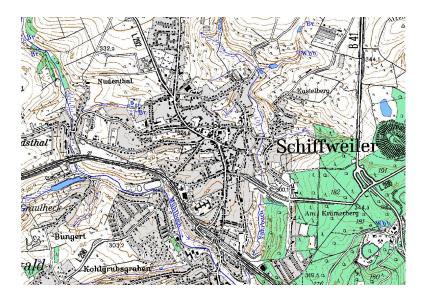


Abbildung 3.6: Schiffweiler [60].

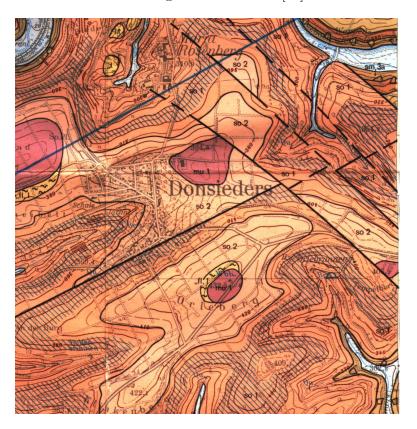


Abbildung 3.7: Geologische Karte von Donsieders [61].

auch das Problembewusstsein und das Interesse. Nur ein einziger Hausbesitzer aus Donsieders konnte für die Studie gewonnen werden.

Viele der Angesprochenen hatten trotz Wissen um die Schädlichkeit des Radons und der Betroffenheit vieler anderer Hausbesitzer kein Interesse an

Neue Methode der Radon-Messung

Forschungsvorhaben der Biophysik an der Uniklinik

Schiffweiler (rp). In Schiffweiler sollen zwecks umfassender Erforschung der Radon-Belastungen im Saarland auch in und an Neubauten Messungen erfolgen. In einem nachgeordneten Forschungsvorhaben werden Ein - und Zweifamilienhäuser erfasst, die nach 1990 errichtet wurden. Bisher hatte man das Augenmerk besonders auf ältere Gebäude gerichtet, da bei Neubauten keine große Belastung vermutet wurde. Ziel der in den kommenden Monaten anlaufenden Untersuchungen ist es, die Auswirkungen bestehender Richtlinien und Normen bezüglich der Abdichtung von Neubauten gegenüber Bodenfeuchtigkeit auf die Radon-Durchlässigkeit zu dokumentieren. Geplant sind Kurz- und Langzeit-Messungen sowie begleitende Bodenluft-Untersuchungen in der Nähe von Gebäuden. Die Bodenluft-Messungen sollen bevorzugt in den Hausgärten erfolgen. Hierzu wird eine dünne, innen hohle Eisenstange bis zu einem Meter tief in den Boden versenkt und durch die Eisenstange die Bodenluft abgesaugt. Eine kleine Messvorrichtung ermittelt automatisch die Radon-Konzentration. Eine Messung dauert normalerweise zirka eine Stunde. Außerdem sind Exhalationsmessungen an Kellerwänden und Fußböden geplant. Bestimmt wird hierbei die Rate, mit der das Radon durch die einzelnen Flächen hindurch gelangt und eine integrierte Messapparatur an die Wand oder den Boden gedrückt. Über eine Messzeit von vier bis fünf Stunden wird das Radon in einem Behälter gesammelt und über die Zunahme der Konzentration die Rate bestimmt.

Für dieses Forschungsvorhaben sollten sich Besitzer von Neubauten, die nach 1990 errichtet wurden, einbinden lassen. Nicht geeignet sind ältere Gebäude, die umgebaut wurden oder an denen ein Anbau errichtet wurde. Weitere Bedingungen sind das Vorhandensein von Plänen oder exakte Kenntnisse über den Aufbau der Bodenplatte, des Kellerfußbodens und der Seitenwände.

♦ Interessierte sich direkt an die Universitätsklinik Homburg, Fachrichtung Biophysik, Prof. Dr. Gert Keller, Bau 76, 66421 Homburg, (0 68 41) 16 62 11, Fax (0 68 41) 16 62 77 wenden. Auch über die Gemeinde Schiffweiler, Bau- und Umweltamt, Frau Kluding, (20 68 21) 6 78 23, ist die Anmeldung möglich. Bei einer schriftlichen Anmeldung müssen die Anschrift und die Telefonnummer des Hauseigentümers und, sofern abweichend, die Anschrift des zu untersuchenden Hauses und das Baujahr angegeben werden.

Abbildung 3.8: Bericht in der Saarbrücker Zeitung vom 1. August 2000.

einer angebotenen Bestimmung der Werte. Von den interessierten Hausbesitzern waren viele nur unter der Bedingung der Nichtweitergabe der Ergebnisse an Personen und Institutionen außerhalb der Studie bzw. der Anonymisierung der Ergebnisse zu einer Mitarbeit bereit. Es überwog wohl die Angst vor einem Wertverlust des neu gebauten Hauses.

3.4.1 Innenraumkonzentration

In allen an der Studie beteiligten Häusern wurden jeweils zwei Picorad- und zwei Kernspurdetektoren, jeweils in einem Wohn- und in einem Kellerraum aufgestellt. Die Kurzzeitdetektoren dienten als erster Messwert zur Information der Bewohner und zur Ermittlung der Expositionszeit der Kernspurdetektoren. Abbildung 3.9 zeigt die Verteilung der gemessenen Innenraumkonzentration mittels Picorad. Alle Werte lagen im unteren Konzentrationsbereich, was zum Teil auf das sehr warme Wetter zur Zeit der Exposition und der damit verbundenen guten Durchlüftung der Räume zurückzuführen ist.

Die über einen Zeitraum von ca. einem Jahr exponierten Kernspurdetektoren bestätigten die überwiegend geringe Radonkonzentration in den untersuchten Wohnhäuser (Abb. 3.10). Keines der Häuser zeigte eine Innenraumkonzentration über $250\,\mathrm{Bq/m^3}$.

Der Mittelwert der Raumluftkonzentration in den Kellerräumen lag mit

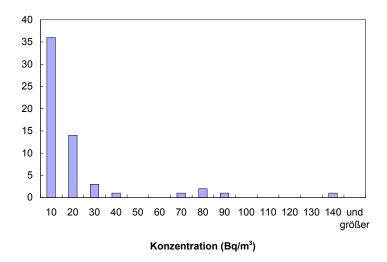


Abbildung 3.9: Mittels Picorad gemessene Innenraumkonzentrationen.

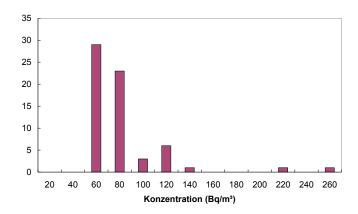


Abbildung 3.10: Mittels Kernspurdetektoren gemessene Innenraumkonzentrationen.

 $(71\pm21)~\rm Bq/m^3$ nur unwesentlich über der mittleren Konzentration in den Wohnräumen von $(69\pm42)~\rm Bq/m^3.$

Nur in wenigen Häusern konnten an den bodenberührenden Innenflächen Exhalationsmessungen durchgeführt werden. Dies lag in den meisten Fällen an durchgehend mit verschiedenen Materialien, wie z.B. Laminat, Keramik oder Holz versiegelten Flächen. Die gemessenen Exhalationsraten lagen im typischen Wertebereich der verwendeten Materialien (ca. $0.1-1\,\mathrm{mBq/m^2s}$). Da zusätzlich keine Wohnung mit auffallend erhöhten Radoninnenraumkonzentrationen in der Studie gefunden wurde, war dieser Befund nicht überraschend.

3.4.2 Bodenluftmessungen

Ähnlich wie die Bodenluft-Messungen lagen mit Konzentrationen zwischen <3 und ca. 100 kBq/m³ niedriger als erwartet (siehe Anhang, Tab. 9.4). Dabei stellte sich eine hohe örtliche Variation der Bodenluftkonzentration heraus, die auf eine starke Zerklüftung des gewachsenen Bodens und einer starken Veränderung der Bodenbeschaffenheit, z.B. einer Verdichtung durch Baufahrzeuge, zurückzuführen sein könnte. In vielen Grundstücken wurde die Bepflanzung um das Haus erst angelegt. Abbildung 3.11 zeigt beispielhaft an zwei gegenüberliegenden Häusern diese starke Variation.

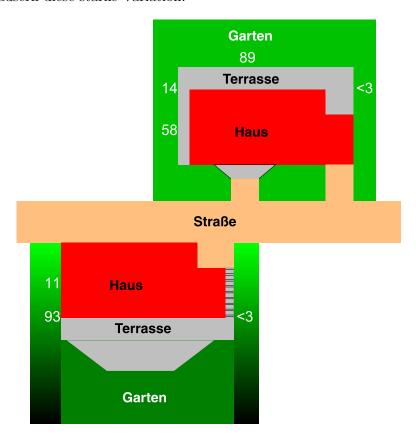


Abbildung 3.11: Bodenluftmessungen an zwei ausgewählten Häusern (unteres Haus in Hanglage mit aufgeschüttetem Garten). Die Bodenluftkonzentration ist in kBq/m^3 an den Messpunkten angegeben.

Die Exhalationsmessungen an zugänglichen Hinterfüllungsbereichen einzelner Häuser ergaben starke, überwiegend witterungsabhängige Schwankungen in den Werten, was nur eine unzureichende Interpretation der Messwerte zulässt.

3.4.3 Bauliche Gegebenheiten

Alle an der Studie beteiligten Wohneigentümer wurden persönlich über die baulichen Gegebenheiten der Häuser befragt. In einem Fragebogen wurde nach dem Alter, der Lage und den verwendeten Baumaterialien, insbesondere der Feuchteund Wärmeisolierung, gefragt. Des Weiteren wurde nach Besonderheiten der Häuser, die möglicherweise die Radoninnenraumkonzentration beeinflusst, gefragt. Im Anhang, Seite 91, befindet sich der Fragebogen und in Tabelle 9.1 und Tabelle 9.2 die Ergebnisse.

Die Hauseigentümer wussten überwiegend sehr gut über die verwendeten Materialien bescheid, was wohl auf die hohe Eigenleistung der Hausbesitzer beim Bau zurückzuführen ist. Es konnte keine auffällige Häufung bestimmter Materialien bzw. Materialkombinationen gefunden werden. Obwohl die meisten Hauseigentümer über die Radonproblematik in Schiffweiler informiert waren, wurde dies bei der Planung der Häuser nicht berücksichtigt. Da Schiffweiler in einer bergbaugeschädigten Region liegt, existieren dementsprechende Bauauflagen für die Neubauten in fast alle Straßen in den Neubaugebieten. So überwiegt die Sorge um Bergsenkungen und die daraus folgenden Bauschäden gegenüber der Sorge um eine mögliche hohe Radonkonzentration. Da die Bauauflagen in bergbaugeschädigten Regionen auch eine Abdichtung gegenüber Radoneintritt bewirken, hat auch diese Tatsache sicherlich zur Senkung der Radonkonzentration in den Wohnräumen in dieser Region beigetragen.

Mit Ausnahme von drei untersuchten Objekten sind alle Häuser in Schiffweiler bergsenkungssicher, d.h. mit verstärkter Bodenplatte oder einem Stahlbetonkeller versehen. Es konnte allerdings keinen Unterschied in der Radonkonzentration zwischen bergbausicher und konventionell gebauten Häusern festgestellt werden.

Es fiel auf, dass in 26 % der Häuser das Wohnzimmer auf Kellerniveau lag und sich zum Teil über mehrere Stockwerke erstreckt. In vielen Häusern existiert keine Trennung zwischen Wohnzimmer und Küchenbereich. Zweidrittel der Häuser stehen in Hanglage. Bei etwa 60 % der Häuser ist der Boden bindig. Mit Ausnahme von drei Häusern wurde eine Bitumendickbeschichtung als Feuchteisolierung verwendet. Bei etwa der Hälfte der Häuser ist eine Drainage verlegt worden.

Bei drei Häusern wurden innerhalb des Untersuchungszeitraums erste Risse im Mauerwerk festgestellt, bei zwei drang Feuchtigkeit durch das Mauerwerk in den Keller. Auch bei diesen Häusern konnte keine im Vergleich zu nichtbetroffenen Häusern erhöhte Radonkonzentration festgestellt werden.

3.5 Diskussion

Es existieren in Deutschland zahl- und umfangreiche Normen und Richtlinien, die die Dichtheit eines Hauses gegen Bodenfeuchte gewährleisten sollen. Da in Deutschland immer mit einem feuchten Boden zu rechnen ist, sollten alle Neubauten nach diesen Normen und Richtlinien gebaut werden. Die zu verwendeten Bau- und Isolationsmaterialien sind dabei festgelegt oder müssen gewissen Kriterien entsprechen. Außerdem werden in den Normen Prüfverfahren festgelegt, durch die die fachgerechte Verarbeitung sichergestellt werden soll. So sollte z.B. bei Dichtungsbahnen die Proben gemäß den entsprechenden Normen [62] zur Prüfung einer Wärmealterung und einer Lagerung in einer wässrigen Lösung unterzogen werden.

3.5. DISKUSSION 39

Die Ergebnisse der Diffusionsraten an Bau- und Isolationsmaterialien bestätigen frühere Messungen. Nur in seltenen Fällen sind Wandbildner, wie Beton, Poroton, Kalksandstein, radondicht. Lediglich polymerverdichtete Spezialbetone, die überwiegend im Brandschutz eingesetzt werden, sind in den üblich verwendeten Rand- und Bodenstärken radondicht, allerdings verhindern die hohen Kosten dieses Betons den größeren Einsatz in Privathäusern. Einzelne Bitumendickbeschichtungen und Dichtungsfolien zeigten gute Radonrückhaltevermögen, wobei keine generelle Aussage oder Vorhersage möglich ist. Problematisch sind die Bitumendachdichtungsbahnen (sog. "Dachpappe" oder "Elefantenhaut"), da diese weder eine ausreichende Radondichtheit noch eine befriedigende Witterungsbeständigkeit aufweisen.

Die Untersuchungen an der Modellhausecke haben gezeigt, dass bei fachlich korrekter Verarbeitung die Feuchteisolierung ausreicht, um Transferfunktionen von unter einem Promille zu erreichen. Dies würde bedeuten, dass Häuser, die in Gebieten mit bis zu 250 kBq/m³ Bodenluftkonzentration gebaut werden, im Idealfall keine zusätzliche, radonspezifische Isolierung bräuchten. Die Radonmessungen in den untersuchten Neubauten ergaben keine erhöhten Radonwerte. Die Transferraten lagen überwiegend im Promille- bis zum Prozentbereich, wobei hohe Transferraten nicht unbedingt von der hohen Innenraumbelastung, sondern auch von einer geringen Bodenluftkonzentration herreichen. Generell kann man bei Häusern aber von einer deutlich höheren Transferrate gegenüber der Modellhausecke ausgehen, die auf Unregelmäßigkeiten bei der Verarbeitung zurückzuführen sein kann. Beispiele dafür wären z.B. Nägel, die durch die schon isolierte Wand geschlagen wurden, um während der Bauphase eine gemessene Höhe zu kennzeichnen. Ebenfalls wurden Öffnungen in der Bodenplatte, durch die Zu- und Ableitungen geführt werden, nicht abgedichtet. Trotz der Tatsache, dass keine speziellen Maßnahmen gegen Radon getroffen wurden, liegen die Transferraten bei maximal 4%. Dies würde bedeuten, dass bei einer Bodenluftkonzentration von ca. 6250 Bg/m³ schon eine Innenraumkonzentration von 250 Bg/m³ erreicht werden könnte. Betrachtet man nur die Häuser, deren Bodenluftkonzentration größer als die untere Nachweisgrenze liegt, liegt die Transferrate bei maximal 1,4%. In solchem Fall würde eine Bodenluftkonzentration von ca. 18 kBq/m³ ausreichen, damit die Innenraumkonzentration vom $250 \,\mathrm{Bg/m^3}$ überschritten wird.

Kapitel 4

Emanation und Diffusion von Radon in porösen Medien

4.1 Herleitung der Gleichungen

Die eindimensionale Diffusion von radioaktiven Gasen – hier Radon (222 Rn) und Thoron (220 Rn) – durch poröse Stoffe wird durch die zwei Fick'schen Gesetze beschrieben:

$$\Phi(x,t) = -D\frac{\partial c(x,t)}{\partial x} \tag{4.1}$$

$$\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c(x,t)}{\partial x^2} - \lambda c(x,t) + q, \tag{4.2}$$

mit c der Aktivitätskonzentration an dem Ort x zur Zeit t, λ der jeweiligen Zerfallskonstanten D dem Diffusionskoeffizienten und Φ der Aktivitätsflussdichte. Dabei wurde angenommen, dass der Körper homogen und isotrop ist. Mit q ist ein allgemeiner Quellterm eingeführt worden, der die Emanation beschreibt. Die zeitunabhängige¹ Lösung der Gleichung (4.2) für den Fall, dass die Diffusion durch eine Seite der Probe verhindert wird, d.h. für

$$\left. \frac{\partial c(x)}{\partial x} \right|_{x=0} = 0 \tag{4.3}$$

und einer äußeren konstanten Konzentration

$$c(l) = c_0, \tag{4.4}$$

mit l = Dicke der Probe, lautet:

$$c(x) = \frac{1}{\lambda} \left[\frac{(c_0 \lambda - q) \left(e^{\beta(l+x)} + e^{\beta(l-x)} \right)}{e^{2\beta l} + 1} + q \right]. \tag{4.5}$$

¹Der Diffusionsvorgang ist dann zeitunabhängig, wenn ein konstantes Konzentrationsgefälle innerhalb der Probe und zum Außenraum hin vorliegt. Bei Messungen mit abgeschlossenen Messvolumina liegt dies nur näherungsweise vor. Zur Auswertung wird normalerweise in diesem Fall nur der Zeitraum betrachtet, in der die Konzentration nahezu linear ansteigt und noch keine Sättigung sichtbar ist. Diese Näherung ist nur eingeschränkt gültig. Siehe auch 4.3 und 4.4.

Zusammen mit Gleichung (4.1) und der Abkürzung $\beta = \sqrt{(\lambda/D)}$ erhält man für die Exhalationsrate, d.h. für die Flussdichte durch die Fläche bei x = l

$$\Phi = \frac{q - c_0 \lambda}{\beta} \tanh(\beta l). \tag{4.6}$$

Für kleine Thiele-Module [63], d.h. für $\beta l \gg 1$, kann man Gl. (4.5) approximieren zu:

$$\Phi = \frac{q - c_0 \lambda}{\beta}.\tag{4.7}$$

Die Exhalation ist unabhängig von der Dicke der Probe, da die Diffusionslänge $R=1/\beta$ wesentlich kleiner als die Dicke ist. Die exhalierenden Radonatome stammen aus einer schmalen Schicht unterhalb der Oberfläche. Der andere Grenzfall, $\beta l \ll 1$ führt zu:

$$\Phi = l(q - c_0 \lambda). \tag{4.8}$$

In diesem Fall ist die Exhalationsrate unabhängig von der Diffusionskonstante.

Durch die Bestimmung der Exhalationsrate ist es prinzipiell möglich, die Emanation zu ermitteln. Das Problem liegt darin, dass mit zunehmender Porenfeuchte sowohl q als auch D variiert. Ein mögliches Messverfahren sähe dann so aus, dass man zuerst bei variierender Feuchte die Exhalationsrate misst. Danach wird für ähnliche Porenfeuchte die Diffusionskonstante bestimmt.

Eine Alternative besteht darin, sich auf Pulverproben zu beschränken. Dabei nimmt man an, dass die Diffusionsvorgänge ausreichend schnell ablaufen, so dass zur jeder Zeit innerhalb des Messvolumens die gleiche Radonkonzentration wie in den Poren des Pulvers zu finden ist. Gleichung (4.2) reduziert sich dann auf

$$\frac{\partial c(t)}{\partial t} = -\lambda c(t) + q \tag{4.9}$$

mit der Anfangsbedingung $c(t=0)=c_a$. Die Lösung lautet:

$$c(t) = c_a e^{-\lambda t} + \frac{q}{\lambda} \left(1 - e^{-\lambda t} \right). \tag{4.10}$$

Im Grenzfall $t \to \infty$ stellt sich eine Sättigungskonzentration von

$$c_s = \frac{q}{\lambda} \tag{4.11}$$

ein. Für kleine Zeiten, d.h. für $\lambda t \ll 1$ kann man (4.10) durch

$$c(t) \approx c_a + (q - c_a \lambda)t \tag{4.12}$$

approximieren.

Die Bestimmung von q erfolgt entweder durch Anfitten des gemessenen Konzentrationsverlaufs an die Gleichungen (4.10) oder (4.12) oder durch Messung der Sättigungskonzentration (4.11).

4.2 Diffusionskonstante

Die Diffusionskontante von Radon in Luft ist relativ gut bekannt und wird in der Literatur [13, 52, 64, 65] mit $0.1 \cdot 10^{-4} \,\mathrm{m}^2 \mathrm{s}^{-1}$ angegeben.

In den vorangegangenen Gleichungen wurde eine einfache "Fick'sche Diffusionskonstante" D verwendet und deren Abhängigkeit von der Porosität und Tortuosität der Probe vernachlässigt. Der Diffusionskoeffizient D hängt mit der molekularen Diffusionskoeffizienten D_m über

$$D = \tau D_m \tag{4.13}$$

zusammen [66].

In einigen Veröffentlichungen wird eine sog. "effektive" Diffusionskonstante definiert, entweder als [67]

$$D_{eff} = pD (4.14)$$

als [68]

$$D_{eff} = \frac{p}{\tau}D, \tag{4.15}$$

oder als [69, 70]

$$D_{eff} = \frac{p}{\tau^2} D, \tag{4.16}$$

mit p der Porosität und τ der Tortuosität der Probe.

Wie perkolationstheoretische Rechnungen der Diffusion reaktiver Gase durch poröse Medien zeigen, ist die Abhängigkeit der Diffusionskonstanten und den Probeparametern nicht eindeutig. Es konnte z.B. gezeigt werden, dass die mit Standardverfahren gemessene Tortuosität und damit auch die Diffusionskonstante von der Reaktionsrate, in diesem Falle von λ , abhängt [71]. Andere Modelle zeigen das Gegenteil, also eine gute Übereinstimmung zwischen der Kontinuumsgleichung (4.2) mit der Definition einer effektiven Diffusionskonstanten und den Perkulationsmodellen [72].

Im Falle der Diffusionsmessung von Radon ist die Reaktionsrate fest. Eine Vergrößerung der Tortuosität bedingt einen verlängerten Diffusionsweg durch die Probe, sie besitzt somit eine größere "effektive Dicke". Da die Dicke der Probe nichtlinear in die Bestimmung der Diffusionskonstanten eingeht (siehe Gl. 2.4), kann man obige Definitionen einer effektiven Diffusionskonstanten in Bezug auf die Tortuosität nur als Näherung ansehen. Messungen an Baustoffen, wie z.B. an den Betonsteinen in Kap 3.2.1, zeigen, dass die Abhängigkeit der Diffusionskonstante nicht linear von der Porosität ist. Im Gegensatz zu Trägermaterialien von Katalysatoren, die meist eine gut definierte Porenstruktur haben, liegt bei Baustoffen eine große Variation in der Porenstruktur vor.

4.3 Vergleich zwischen freier und gebundener Exhalation

Im Falle, dass Radon aus einer massiven Probe in ein abgeschlossenes Volumen exhaliert, nimmt die Radonkonzentration innerhalb des Volumens kontinuierlich bis zu einem Sättigungswert zu. Die Exhalationsrate ist also nicht mehr

konstant. Die Randbedingung, die den Anschluss der Probe an das Volumen beschreibt, lautet dann

$$l\frac{\partial c(x,t)}{\partial t} = -l\lambda' c(d) - D\epsilon \frac{\partial c(x,t)}{\partial x} \bigg|_{x=d}, \tag{4.17}$$

mit l=V/A= (der mittleren) Höhe der abgeschlossenen Luftsäule im Volumen V über der Probe, A die exhalierende Fläche und der modifizierten Zerfallskonstante $\lambda'=\lambda+\lambda_{leck}$, die eine mögliche Leckrate, d.h. einem möglichen Verlust von Radon durch die Wände des Volumens, berücksichtigt.

Betrachtet man zunächst wieder den zeitunabhängigen Fall, d.h. $\partial c(x,t)/\partial t$ = 0, so erhält man als Lösung von (4.2)

$$c_l(x) = \frac{q}{\lambda} \left(1 - \frac{\cosh(\beta x)}{\cosh(\beta d) + \frac{\epsilon \sinh(\beta d)}{\beta l \gamma}} \right), \tag{4.18}$$

mit $\gamma = \lambda'/\lambda$ [73]. Die Exhalationsrate berechnet sich zu

$$\Phi_{l} = -\epsilon D \left. \frac{\partial c_{l}(x)}{\partial x} \right|_{x=d}
= \frac{q_{\beta}^{\epsilon}}{\coth(\beta d) + \frac{\epsilon}{\beta l \gamma}}.$$
(4.19)

Die freie Exhalation ergibt sich wiederum im Grenzfall $l \to \infty$. Das Verhältnis von freier zu gebundener Exhalation ist

$$\frac{\Phi_{l\to\infty}}{\Phi_l} = 1 + \frac{\epsilon \tanh(\beta d)}{\beta l \gamma}.$$
 (4.20)

Da

$$\frac{\tanh(\beta d)}{\beta} < l \tag{4.21}$$

und

$$\lim_{\beta \to 0} \frac{\tanh(\beta d)}{\beta} = d,\tag{4.22}$$

kann (4.20) nach oben abgeschätzt werden zu

$$\frac{\Phi_{l\to\infty}}{\Phi_l} \le 1 + \frac{\epsilon d}{l\gamma}.\tag{4.23}$$

Des Weiteren gilt $\epsilon \leq 1$ und $\gamma \geq 1$, so dass man weiter vereinfachen kann zu

$$\frac{\Phi_{l\to\infty}}{\Phi_l} \le 1 + \frac{d}{l}.\tag{4.24}$$

4.4 Zeitabhängige gebundene Exhalation

Die Lösung der zeitabhängigen Diffusionsgleichung (4.1) unter der Randbedingung eines abgeschlossenen Volumens (4.17) lautet [73]

$$c_{l}(x) = \frac{q}{\lambda} \left\{ 1 - \frac{\cosh(\beta x)}{\cosh(\beta d) + \frac{\epsilon \sinh(\beta d)}{\beta l \gamma}} - \frac{\tanh(\beta d) \{1 + \alpha \beta d \coth(\beta l)\} e^{-\lambda t}}{\beta d (1 + \alpha) \{1 + \gamma \alpha \beta d \coth(\beta d)\}} - G(x, t) \right\},$$

$$(4.25)$$

wobei $\alpha = l/\epsilon d$ das Verhältnis zwischen äußerem und innerem Volumen angibt. Die ersten beiden Terme sind identisch mit der zeitunabhängigen Lösung (4.18), der dritte Term ist unabhängig von x, so dass er keinen Einfluss auf die Exhalation hat. Der vierte Term G(x,t) beschreibt letztendlich, wie sich der Konzentrationsverlauf innerhalb der Probe auf Grund der Randbedingungen gemäß der gebundenen Exhalation mit der Zeit verändert. Der exakte Ausdruck für G(x,t) im Fall $\gamma=1$ lautet

$$G(x,t) = \frac{2 \tanh(\beta d) e^{-\lambda t}}{\beta d} \times \sum_{i=1}^{\infty} \frac{d^2 \cos(y_i \frac{x}{d}) e^{-(y_i \beta d)^2 \lambda t}}{(1 + \alpha + \alpha^2 y_i^2) (d^2 + \frac{y_i^2}{\beta^2}) \cos y_i},$$
(4.26)

wobei die Größen y_i die positiven Lösungen der transzendentalen Gleichung $-\alpha y_i = \tan y_i$ sind. Daraus berechnet sich die Exhalation zu

$$\Phi_{l}(t) = \frac{q_{\beta}^{\epsilon}}{\coth(\beta d) + \frac{\epsilon}{\beta l}}$$

$$- \frac{2q \tanh(\beta d) e^{-\lambda t}}{\lambda \beta d} \sum_{i=1}^{\infty} \frac{dy_{i} \sin(y_{i}) e^{-(y_{i}\beta d)^{2}\lambda t}}{(1 + \alpha + \alpha^{2} y_{i}^{2})(d^{2} + \frac{y_{i}^{2}}{\beta^{2}}) \cos y_{i}}$$

$$= \Phi_{l} - \Phi'_{l}(t).$$
(4.27)

4.5 Emanation

Die Freisetzung des Radons aus der Festkörpermatrix in das Porenvolumen nennt man Emanation und wird in Gl. (4.2) durch den Quellterm q beschrieben. Dieser Quellterm ergibt sich zu (z.B. in[66])

$$q = \frac{E\lambda\rho C}{\epsilon},\tag{4.28}$$

wobei ρ die Materialdichte, ϵ die Porosität, C die Radiumbzw. Thoriumaktivitätskonzentration in Bq/kg und E der Emanationskoeffizient des Materials ist. Durch eine Messung der Exhalationsrate oder der Sättigungskonzentration, sowie der davon unabhängigen Messung der Größen ρ , ϵ und C, ist es möglich, den Emanationskoeffizient zu bestimmen.

4.6 Emanationskoeffizient

Der Emanationskoeffizient ist der Anteil aller in der Probe entstehenden Radonatome, die in das Porengefüge gelangen und so zur Exhalation beitragen. Diese Größe hängt von der Korngröße und -form, der Porengröße und -form, der Radiumverteilung innerhalb der Körner und dem Wassergehalt innerhalb der Poren ab. Prinzipiell existieren mehrere Mechanismen, die bewirken, dass ein Radonatom in das Porensystem gelangt und so zur Exhalation beiträgt. Die wichtigsten Vorgänge sind:

Rückstoß: Beim Alpha-Zerfall des Radiumatoms im Korn erhält das Radonatom einen Impuls, der dazu führen kann, dass das Radonatom das Korn verlässt und ins Porensystem eindringt.

Diffusion: Reicht der Rückstoß nicht aus, dass das Radonatom das Korn verlässt, kann es diffusiv durch den Festkörper wandern und das Porensystem erreichen. Aufgrund der geringen Diffusionslänge innerhalb des Kornes ist der Anteil der Radonatome, die durch Diffusion das Porensystem erreichen können, kleiner als der Anteil durch Rückstoß freigesetzten Radonatome.

Löslichkeit der Matrix Ein Teil der Radonatome kann das Porensystem erreichen, wenn Porenwasser die Gesteinsmatrix, in dem sie eingebettet sind, auflöst.

Allerdings gehen auch einige Radonatome für die Exhalation verloren. Dies liegt im Wesentlichen an folgenden Faktoren:

- Ein Teil der Radonatome dringt durch ihren Rückstoß wieder in ein Korn ein. Dies kann ein Nachbarkorn oder im Falle einer konkav geformten Oberfläche auch das gleiche Korn sein. Porenwasser verringert die Rückstoßlänge, so dass mehr Radonatome in den Poren gestoppt werden und so der Emanationskoeffizienten ansteigt.
- Ein Teil der Radonatome löst sich im Porenwasser und verlässt deswegen nicht das Porensystem und trägt nicht zur Exhalation bei.
- Mit zunehmender Porenfeuchte nimmt auch die Diffusion ab, da mehr und mehr Poren mit Wasser gefüllt sind und so kein Gas durchdiffundieren kann.

4.6.1 Der Rückstoß

Bei dem Zerfall eines Radiumatomes werden das entstehende Radonatom und das Alphateilchen in entgegengesetzte Richtungen emittiert. Die Aufteilung der Zerfallsenergie auf die beiden Teilchen geschieht gemäß der Energie- und der Impulserhaltung. Die Reaktionsgleichung lautet:

$$^{226}_{88}Ra \rightarrow ^{222}_{86}Rn + \alpha + E \tag{4.29}$$

Die Zerfallsenergie E ist durch den Massenverlust gegeben:

$$E = m_{Ra}c^2 - m_{Rn}c^2 - m_{\alpha}c^2 = 0,005229c^2 = 4,8707 \,MeV, \tag{4.30}$$

mit $m_{Ra}=226,025402$ u, $m_{Rn}=222,017570$ u, $m_{\alpha}=4,002603$ u und dem Energieäquivalent von 1 u = 931,48 MeV.

Die Energie verteilt sich auf die kinetische Energien (T) der beiden neuen Teilchen:

$$E = T_{Rn} + T_{\alpha} \tag{4.31}$$

Mit Hilfe der Impulserhaltung können die kinetischen Energien bestimmt werden:

$$\vec{p}_{Rn} = -\vec{p}_{\alpha}$$
 d.h. $p_{Rn} = p_{\alpha}$, (4.32)

mit \vec{p}_{Rn} und \vec{p}_{α} den Impulsen des Radonatoms und des Alphateilchen. Des Weiteren gilt:

$$T_{Rn} = \frac{p_{Rn}^2}{2m_{Rn}}$$
 und $T_{\alpha} = \frac{p_{\alpha}^2}{2m_{\alpha}}$. (4.33)

Daraus errechnet sich die kinetische Energie des Radonatoms zu:

$$T_{Rn} = \frac{m_{\alpha}}{m_{Rn} + m_{\alpha}} E = 0,0863 \, MeV$$
 (4.34)

Die Rückstoßenergie reicht aus, das Radonatom in Luft etwa 70 μ m, in Wasser etwa 70 nm und in Gesteinen einige zehn Nanometer zu bewegen [74].

4.6.2 Diffusion von Radon in Gesteinen

Die Radonatome, die durch den Rückstoß nicht emanierten, können durch interkristalline Diffusion das Porenvolumen erreichen. Die Differentialgleichung, die die Radonkonzentration innerhalb des Materials beschreibt, lautet:

$$\frac{\partial C_{Rn}}{\partial t} = D_{Rn} \frac{\partial^2 C_{Rn}}{\partial x^2} + \lambda_{Ra} C_{Ra} - \lambda_{Rn} C_{Rn} - \lambda_{Rn} C_{Rn} E' \tag{4.35}$$

mit E' der Wahrscheinlichkeit, dass das Radonatom durch Rückstoß emaniert ist. Analog zur Lösung der Diffusionsgleichung 4.2 lässt sich wieder eine Diffusionslänge R bestimmen. In mineralischen Phasen liegen die Diffusionskoeffizienten von Radon in der Größenordnung von $10^{-23}\,\mathrm{m}^2\mathrm{s}^{-1}$ [75]. Daraus ergeben sich Diffusionslängen von etwa 2 nm. Der Einfluss der Diffusion auf die Emanation kann also gegenüber dem Rückstoß vernachlässigt werden.

4.6.3 Auflösen der Matrix

Der Einfluss des Porenwassers auf die Emanation beschränkt sich nicht nur auf die Verringerung der Rückstoßweite innerhalb der Pore. Denkbar ist auch, dass ein Teil der Radonatome die Poren erreichen, weil das Wasser die Matrix, in der die Radonatome eingebettet sind, auflösen kann. Die Löslichkeit hängt von vielen Parametern, wie z.B. dem pH-Wert des Porenwassers und der Temperatur ab. Da die Löslichkeit von Mineralien unter Normalbedingungen sehr gering ist, kann man diesen Beitrag zur Emanation vernachlässigen. Zum Beispiel ist die

Löslichkeit von CaSO₄ bei 0,25 g auf 100 g Wasser und 25 °C und das Löslichkeitsprodukt (das Produkt der Ionenkonzentrationen in gesättigter Lösung) von BaSO₄ (Baryt) nur $1 \cdot 10^{-10}$ (mol/l)⁴[76].

4.7 Poröse Medien

Poröse Medien besitzen gewöhnlich einen äußerst komplizierten inneren Aufbau. Poren und Körner liegen ungeordnet vor. Auch die Grenzflächen zwischen Feststoff und Hohlräumen zeigen eine komplexe Struktur. Dieser komplizierte Aufbau macht es schwer, realitätsnahe Modelle der porösen Materialien zu erstellen. Man beschränkt sich auf relativ einfache Porenmodelle [77, 78, 79], wie z.B. Kapillarmodelle, in denen Röhren in gewissen Anordnungen die Porenstruktur beschreiben oder Kugelmodelle, in denen die Poren oder die Feststoffkörner als Kugeln unterschiedlicher Packung dargestellt werden. Zur Messung der Porenstruktur werden Effekte beobachtet, die unmittelbar von der Porenstruktur begründbar sind. Allerdings ist die Auswertung dieser Messungen von dem zugrundeliegenden Porenmodell abhängig, wodurch es zu Fehlinterpretationen kommen kann [80].

Einige Porenmodelle sollen im Folgenden vorgestellt werden. Bis auf das Gittermodell werden in den Modellen der poröse Stoff als homogen angesehen. Die Poren sind gleichmäßig verteilt und die Parameter, wie Porosität und Tortuosität werden durch "effektive", d.h. gemittelte Werte beschrieben. Im Falle der Transporteigenschaften und der Emanation bilden diese Modelle die Realität nur unzureichend ab. So kann eine Oberflächenversiegelung vollständig die Diffusion unterbinden, was durch eine homogene Modellierung der Probe nicht zu sehen wäre. Die Emanation ist ein lokaler Vorgang, der deswegen von der kleinräumigen Struktur der Pore und des Korns abhängig ist. Aus diesem Grunde wurde zur Simulation der Transportvorgänge in Kapitel 7 ein Gittermodell gewählt und zur Beschreibung der Emanation in Kapitel 6.2 Monte-Carlo-Rechnungen durchgeführt.

4.7.1 Einfache Porenmodelle

Das einfachste Modell einer Pore ist eine zylindrische Einzelpore mit einer glatten Wand. In einer zweiten Stufe können solche Zylinder mit festen Radien oder einer Radiusverteilung parallel zusammengefasst werden. Die Porenradien können experimentell bestimmten Verteilungen und der ermittelten Porosität angepasst werden. Eine weitere Stufe der Modellierung besteht in der Aneinanderreihung von Zylindern unterschiedlicher Radien [81]. Da die experimentelle Bestimmung der Porenradienverteilung nicht die Position bestimmter Radien innerhalb des porösen Materials wiedergibt, werden zwei Poren angenommen, deren Radien sich gemäß der Verteilung zur Mitte hin verjüngen (sog. konvergierender Kanal) bzw. vergrößern (divergierender Kanal). In einem weiteren Modell kann man den Festkörper mit graden Poren bei gegebener Porenradiusverteilung und zufälligem Winkel [89] beschreiben. In diesem Modell zeigt sich, dass die Tortuosität neben der Geometrie auch von der Temperatur, Druck und dem diffundierenden Gas abhängt. Im Random-Pore-Modell [82] wird von einer

bidispersen Porenverteilung (Makro- und Mikroporen) ausgegangen, da viele poröse Stoffe aus der Verdichtung von mikroporösen Partikeln entstehen. Die Diffusion setzt sich dann aus Anteilen in den Makroporen und in den Mikroporen zusammen. Vereinfacht ergibt sich dann für die effektiven Diffusionskonstante den Wert

$$D_{eff} = D_M \epsilon_M^2 + \frac{\epsilon_m^2 (1 + 3\epsilon_m)}{1 - \epsilon_M} D_m, \tag{4.36}$$

wobei der Index M die Diffusionskonstante und Porosität in den Makroporen und m in den Mikroporen angibt.

4.7.2 Das Dusty-Gas-Modell

Dieses Modell geht von einer Idee von Maxwell aus dem Jahre 1860 aus. Er untersuchte den konvektiven und diffusiven Transport von Gas in porösen Stoffen, in dem er das poröse Medium als zufällige Anordnung im Raum unbeweglicher großer Kugeln beschrieb. Im Dusty-Gas-Modell wird der Festkörper als inertes Gas betrachtet, deren Teilchen so groß sind, dass sie sich nicht mehr bewegen können (Staub). Man betrachtet also die Diffusion von zwei Gasen, wobei eine Komponente als unbeweglich angesehen wird. Das Dusty-Gas-Modell basiert auf der Boltzmann-Gleichung, und deren physikalische Vorraussetzungen müssen somit auch für das Dusty-Gas-Modell gelten. So muss die Gaskonzentration so hoch sein, dass statistische Gesetzte gelten, die Verteilung der einzelnen Teilchen muss voneinander unabhängig sein, es treten keine quantenmechanische Effekte auf und die Struktur der Strömung muss größer als die Molekülgröße sein. Neben der hier betrachteten molekularen Diffusion wird auch die Knudsen-Diffusion (die Gasdichte ist so gering, dass ausschließlich Teilchen-Wand-Stöße auftreten), Oberflächendiffusion und Konvektion durch dieses Modell beschrieben.

4.7.3 Gittermodelle

Durch die größer werdenden Rechenleistungen von Computer ist es in den letzten Jahren möglich geworden, Porennetzwerke durch zwei- oder dreidimensionale Gitternetzwerke zu beschreiben. Dabei werden die Poren durch miteinander verbundene Röhren repräsentiert, denen individuelle Eigenschaften, wie z.B. Länge und Durchmesser zugeordnet werden kann. Durch Variation des Netzwerkes können unterschiedliche Verzweigungsgrade, Verstopfungen, Verengungen sowie Reaktionen modelliert werden. Eine Einführung in die Perkolationstheorie findet man in [83]. Einen Vergleich zwischen Kontinuumsmodellen mit Perkolationsnetzwerken wird in [84] beschrieben. Die Ergebnisse der Netzwerksimulationen stimmen danach nur dann mit denen aus den Kontinuumsmodellen ermittelten effektiven Diffusionskonstanten überein, wenn das System weit von der Perkolationsschranke entfernt sei und auch sonst der Fluss im Netzwerk wenig behindert wird.

4.7.4 Fraktale

In den bisher vorgestellten Modellen wurde die Oberfläche der Poren als ideal glatt angenommen. Ein Modell zur Beschreibung rauer Oberflächen stellt die Theorie der Fraktale da. Eine Einführung in die Fraktale findet man in [85]. Physikalische Aspekte der Fraktale werden z.B. in [86] besprochen. Fraktale zeichnen sich durch zwei Eigenschaften aus: der Selbstähnlichkeit und einer fraktalen, d.h. gebrochenen Dimension. Ein Fraktal ähnelt sich in jeder Vergrößerungsstufe sich selber, d.h. die Längenverhältnisse und Winkeln bleiben bei jeder Unterstruktur gleich. Die fraktale Dimension ist der zentrale Parameter, durch den ein Fraktal gekennzeichnet wird. Er hängt von der Dimension des Raumes, in dem ein Fraktal eingebettet ist, ab, ist aber im Allgemeinen kleiner als diese. Im Falle einer Porenoberfläche liegt die fraktale Dimension also zwischen 2 (für eine glatte Oberfläche) und 3 (dem umschließenden Raum). Wenn man die Größe einer fraktalen Oberfläche bestimmen will, bestimmt man die Anzahl $L(\eta)$ der sie vollständig umschließenden regelmäßigen Flächenstücke der Kantenlänge η , und betrachtet, wie sich die Anzahl im Grenzfall $\eta \to 0$ verhält. Es gilt asymptotisch das Skalengesetz

$$L(\eta) \sim \eta^{1-\delta}.\tag{4.37}$$

mit δ der fraktalen Dimension. Typische fraktale Dimensionen von Festkörpern liegen bei 2,2 für vulkanisches Glas aus Liperi, 2,14 für Quarz aus Madagaska, 2,15 für Belgischer Quartz (Snowit), 2,21 für zerriebener Quartz, 2,35 für zerriebenes Bleiglas, 2,83 für Pechblende [87] und für Sand 2,20 [88].

Kapitel 5

Messungen des Emanationskoeffizienten

5.1 Messungen an einer Pulverprobe

Als Beispiel wurde eine Exhalationsmessung an einer Pulverprobe " $Pumex\ 0/10\ STD$ " durchgeführt.

Die Probe wurde vor der Messung getrocknet und zur Bestimmung der Emanation und der Radionuklidkonzentration aufgeteilt. Für die Emanationsbestimmung wurde 795 g der Probe drei Wochen lang unter normalen Umgebungsbedingungen gelagert. Dabei nahm sie 2,3 g, d.h. 0,29 Gewichtsprozent Feuchtigkeit auf. Zur Bestimmung der Radium- und Thoriumkonzentration wurde $185,2\,\mathrm{g} = 200\,\mathrm{ml}$ im trockenen Zustand abgefüllt, und für vier Wochen luftdicht verschlossen, damit ein Gleichgewicht mit den Folgeprodukten erreicht wurde.

Die Abb. 5.1 zeigt die gemessene Radon- bzw. Thoronkonzentration innerhalb des Messvolumens in Abhängigkeit der Zeit. Mit Hilfe der Gleichungen (4.10) für Radon und (4.11) für Thoron wurden die Quellterme bestimmt zu:

$$q_{Rn} = 2,74 \cdot 10^{-4} \,\mathrm{Bq/m^3s}$$

 $q_{Tn} = 0,136 \,\mathrm{Bg/m^3s}.$

Gammaspektrometrisch wurde eine Radiumkonzentration von 150 Bq/kg = 138,90 kBq/m³, sowie für Thorium von 145 Bq/kg = 134,270 kBq/m³ gemessen. Mit Hilfe der Gleichung

$$q = E\lambda C \frac{m}{V_{qes}} = E\lambda C' \frac{V_{probe}}{V_{qes}}, \tag{5.1}$$

wobei m die Masse der Probe, C' die Radium- bzw. Thoriumkonzentration in Bq/m³, $V_{ges} = 6,51 \cdot 10^{-3}$ m³ das Gesamtvolumen der Messapparatur einschließlich des Probenbehälters ($V_{probe} = 1,37 \cdot 10^{-3}$ m³) angibt, konnte der Emanationskoeffizient E bestimmt werden zu:

$$E_{Rn} = 4,75 \cdot 10^{-3}$$

 $E_{Tn} = 4,02 \cdot 10^{-4}$.

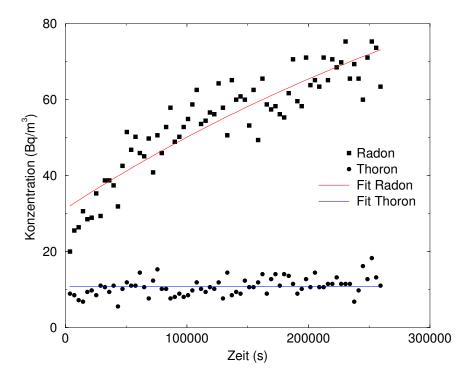


Abbildung 5.1: Messung der Radon- bzw. Thoronexhalation. Die durchgezogenen Linien zeigen die Fits entsprechend der Gleichungen (4.10) und (4.11).

Die Exhalationsraten für Radon und Thoron kann man ebenfalls aus dem zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentrationen innerhalb des Messvolumens bestimmen. Im Falle des Radons beschränkt man sich auf den linear ansteigenden Bereich. Da die Exhalationsrate den Aktivitätsflussdichte angibt, erhält man

$$\Phi_{Rn} = \frac{V\partial c}{A\partial t},\tag{5.2}$$

mit V der Größe des Messvolumens (5,14·10⁻³ m³) und A der exhalierenden Fläche (0.053 m²). Der lineare Fit durch die ersten 30 Messpunkte ergibt eine Steigung $\partial c/\partial t = 3,2768\cdot 10^{-4} \mathrm{Bq/m^3}$ s und eine Anfangskonzentration von $c_0 = 24,36\mathrm{Bq/m^3}$. Die Exhalationsrate errechnet sich mit (5.2) zu $\Phi_{Rn} = 3,178\cdot 10^{-5}$ Bq/m²s.

Aus den Exhalationsraten kann mit Hilfe der Gleichungen (4.8) und (5.1) nicht q und E berechnet werden, da Gl. (4.8) laut Randbedingung (4.4) nur für den Fall konstanter Radonkonzentration innerhalb des Messvolumens gilt.

Eine analoge Rechnung lässt sich für das Thoron durchführen. Da innerhalb des Messvolumens ein Gleichgewicht der Konzentration herrscht, strömen durch die exhalierende Fläche genau so viele Atome, wie in dem Messvolumen zerfallen. Man erhält also für die Exhalationsrate

$$\Phi_{Tn} = \frac{\lambda_{Tn} V \bar{c}}{A},\tag{5.3}$$

mit \bar{c} der mittleren Aktivitätskonzentration des Thorons. Der Mittelwert über die Konzentrationen innerhalb des Messvolumens ergibt 10,82 Bq/m³, woraus

eine Exhalationsrate von $\Phi_{Tn} = 1,32\cdot10^{-2} \text{ Bq/m}^2\text{s}$ folgt. Eine Anfangskonzentration konnte wegen der geringen Halbwertszeit nicht bestimmt werden. Die Gleichungen (4.8) und (5.1) ergeben

$$q_{Tn} = 0.53 \,\mathrm{Bq/m^3s},$$

 $E_{Tn} = 3.13 \cdot 10^{-4}.$

Die unterschiedlichen Berechnungsmethoden unterscheiden sich um etwa 22% in ihren Ergebnissen.

Die Probe wurde daraufhin befeuchtet und über mehrere Tage in einer feuchten Umgebung gelagert, um eine gleichmäßige Durchfeuchtung zu gewährleisten. Dabei nahm sie 13,1 g Wasser auf, was etwa 1,6 Gewichtsprozent entspricht. Danach wurde eine weitere Exhalationsmessung durchgeführt. Während der 119 Stunden Messdauer verlor die Probe 2,8 g an Feuchtigkeit, wodurch sich der Gewichtsanteil auf 1,3 % reduzierte. Die Emanationskoeffizienten konnten durch Anfitten der Messpunkte zu $E_{Rn}=7,80\cdot10^{-3}$ und $E_{Tn}=5,60\cdot10^{-4}$ bestimmt werden, die Exhalationsraten zu $\Phi_{Rn}=6,62\cdot10^{-5}$ Bq/m²s bzw. $\Phi_{Tn}=1,64\cdot10^{-2}$ Bq/m²s.

Die Änderungen der Feuchtigkeit während der Messungen legen nahe, dass es durch ein Leck in der Messapparatur auch zu einer endlichen Verlustrate an Radon kommt. Diese Leckrate kann man mit einer modifizierten Zerfallskonstante berücksichtigen:

$$\lambda'_{Rn} = \lambda_{Rn} + \lambda_{Leck}$$

 $\lambda'_{Tn} = \lambda_{Tn} + \lambda_{Leck}$.

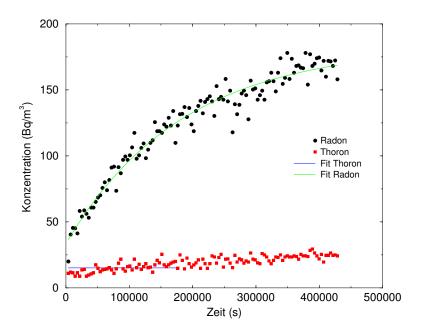


Abbildung 5.2: Messung der Radon- bzw. Thoronexhalation. Die durchgezogenen Linien zeigen die Fits unter Berücksichtigung einer Leckrate.

Abbildung 5.2 zeigt den Konzentrationsverlauf bei einer Probenfeuchte zwischen 1,6 % und 1,3 %. Die Fits wurden unter Berücksichtigung einer Leckrate von $\lambda_{Leck} = 9,293 \cdot 10^{-6} \,\mathrm{s}^{-1}$ bestimmt. Da $\lambda_{Tn} \gg \lambda_{Leck}$ ist, konnte auf eine Anpassung der ermittelten Thoron-Emanationsraten verzichtet werden. Der Anstieg der Thoronwerte ist auf einen zunehmenden Überlapp der Peaks des ²¹⁶Po und des ²¹⁴Po zurückzuführen. Eine rechnerische Korrektur dieses Überlapps stellte sich wegen der sehr kleinen Zählrate, d.h. Peakhöhe des ²¹⁶Po, als nicht praktikabel heraus. Die (korrigierten) Emanationskoeffizienten für diese und weitere Messungen sind in Tabelle 5.1 und geplottet als Abbildung 5.3 zu finden. Die Sättigung wurde bei etwa 25 Gewichtsprozent erreicht. Vor dieser Messung wurde das überstehende Wasser dekantiert.

Feuchte (%)	E_{Rn}	E_{Tn}
0,29	$1,28\cdot10^{-2}$	$4,02\cdot10^{-4}$
1,3 - 1,6	$3,46\cdot10^{-2}$	$5,60\cdot10^{-4}$
3,4 - 3,6	$7,79 \cdot 10^{-3}$	$5,40\cdot10^{-4}$
4,7 - 4,9	$1,02\cdot10^{-2}$	$6,10\cdot10^{-4}$
5,4 - 5,8	$4,55\cdot10^{-2}$	$1,30\cdot10^{-3}$
17,4 - 17,6	$2,55\cdot10^{-2}$	$6,70\cdot10^{-4}$
18,6 - 19,0	$1,62\cdot10^{-2}$	$5,25\cdot10^{-4}$
20,5 - 25,7	$2,44\cdot10^{-2}$	$9,20\cdot10^{-4}$
20,8 - 21,2	$8,00\cdot10^{-3}$	$6,60\cdot10^{-4}$
24,9 - 25,2	$7,40\cdot10^{-3}$	$3,82 \cdot 10^{-4}$

Tabelle 5.1: Emanationskoeffizienten für Radon (korrigiert) und Thoron in Abhängigkeit der Probenfeuchte.

5.1.1 Abhängigkeit der Emanation von der Feuchte

Verschiedene Veröffentlichungen (z.B. [66, 90, 91, 92]) und die eigenen Messungen zeigen, dass die Emanation von der Probenfeuchte abhängt. Der Grund ist die verkürzten Reichweite der durch den Rückstoß beschleunigten Radonatome in den mit Wasser gefüllten Poren. Eine Zunahme des Porenwassergehaltes verringert die Wahrscheinlichkeit, dass das Radon die Pore durchquert und wieder in die Gesteinsmatrix eindringt.

Bei der Messung der exhalierten Radonatome muss noch die Löslichkeit von Radon in Wasser berücksichtigt werden. Die Oswald'sche Löslichkeit ist definiert als das Verhältnis zwischen den Konzentrationen der im Wasser und der in der Luft gelösten Atome:

$$\alpha = \frac{C_w}{C_l}. (5.4)$$

Bei Raumtemperatur (22°C) liegt die Oswald'sch Löslichkeit bei ca. 25%. Die im Porenwasser gelösten Radonatome exhalieren nicht und die Messdaten müssen dementsprechend korrigiert werden. Allerdings ist nur ein gewisser Teil der Poren mit Wasser gefüllt. Dieser Anteil n_w muss in (5.4) mitberücksichtigt werden,

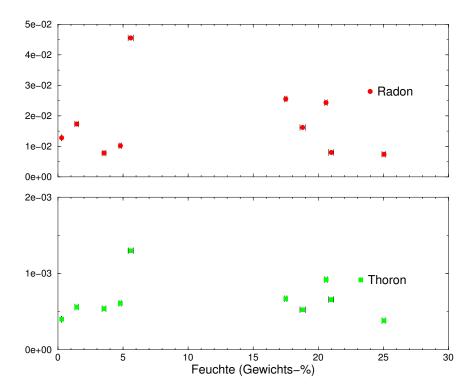


Abbildung 5.3: Plot der Emanationskoeffizienten für Radon (korrigiert) und Thoron in Abhängigkeit von der Probenfeuchte

so dass man für die Korrektur der Messwerte einen Faktor

$$\alpha' = n_l \frac{C_w}{C_l}. (5.5)$$

erhält. Als Abschätzung für n_l wurde das Verhältnis zwischen der aktuellen Porenfeuchte und der Porenfeuchte der mit Wasser gesättigten Probe gewählt.

Auf eine Anpassung der Effizienz des Detektors bzw. der elektrostatischen Abscheiden an die Feuchtigkeit wurde verzichtet und durchweg die Effizienz für die Sättigungskonzentration verwendet. Wenn genügend Wasser vorhanden ist, stellt sich in einem abgeschlossenen Volumen nach hinreichend langer Zeit die temperaturabhängige Sättigungskonzentration in der Luft ein. Bei Raumtemperatur liegt der Dampfdruck von Wasser bei ca. 2330 Pa. Dies entspricht einer absoluten Luftfeuchtigkeit von ca. 16 mg/l. Da der Wassergehalt aller Proben über 80 mg (Messvolumen ca. 5 l) lag, kann davon ausgegangen werden, dass sich bei jedem Experiment im Messvolumen die Sättigungskonzentration des Wassers eingestellt hatte.

5.1.2 Unterschied des Emanationskoeffizienten zwischen Radon und Thoron

Die durchgeführten Messungen zeigen einen deutlichen Unterschied in den Emanationskoeffizienten von Radon und Thoron. Der Quotient zwischen den Koeffizienten liegen zwischen 0.13 bei ca. 21~% Porenfeuchte und 0.62 bei ca. 1.5~%

Porenfeuchte. Es konnte keine eindeutige Anhängigkeit des Quotienten von der Porenfeuchte beobachtet werden.

Der Differenz zwischen den Emanationskoeffizienten liegt in der unterschiedlichen Halbwertszeit von Radon und Thoron sowie in der Zerfallsenergie und Verteilung der Mutternuklide. Radon-222 hat eine ca. 6000 mal längere Halbwertszeit als Radon-220. Da die Diffusionslänge von der Wurzel der Halbwertszeit abhängt, kann Radon-222 etwa 77 mal weiter diffundieren als Radon-220. Wenn die Diffusion des Radons aus dem Korngefüge der alleinige Mechanismus wäre, würde man auch eine um ca. 77-fache größere Emanation des Radon-222 erwarten. Als zweites besitzt das Radon-220 eine um ca. 25 % höhere Rückstoßenergie. Damit kann einerseits auch Thoron in den Porenraum entweichen, welches tiefer im Korn als das Radon entstanden ist, andererseits erhöhen sich die Chancen, dass das Thoron in ein Nachbarkorn eindringt. Auf Grund der unterschiedlichen Reichweite innerhalb des Kornes im Vergleich zum Porenraum überwiegt der zweite Fall. Man würde also einen noch größeren Unterschied zwischen der Radon- und der Thoronemanation erwarten.

In [67] wurde ein Unterschied zwischen den Emanationskoeffizienten von maximal 0,10 beobachtet und geschlossen, dass die Emanation durch den Rückstoß von direkt unter der Partikeloberfläche entstehenden Radon-222- und Radon-220-Atomen in das Porensystem und die Diffusion in inneren Oberflächen (Korngrenzen, Versetzungen) vollzogen wird. Dabei wurde eine unterschiedliche Verteilung der Mutternuklide im Korn, und die daraus sich ergebende Abweichungen in der Emanation, vernachlässigt. Des Weiteren wurde nicht beachtet, dass durch die größere Rückstoßreichweite innerhalb der Pore das Thoron auch eher in die Nachbarkörner eindringen könnte.

Die hier gemessenen Werte legen nahe, dass alle drei Faktoren eine Rolle spielen und eine Voraussage der Thoronemanation aus gemessenen Radon-Emanationsraten nicht sinnvoll ist.

5.1.3 Gammaspektroskopische Messmethode

Neben der alphaspektroskopischen Messung des exhalierten Gases kann man den Emanationskoeffizienten von Radon (222 Rn) auch mittels gammaspektroskopischer Methode bestimmen. Dazu werden die Intensitäten der Gammalinien der kurzlebigen Radon-Folgeprodukte 214 Bi oder 214 Pb in zwei Messungen verglichen. Die erste Messung erfolgt an der offen gelagerten Probe, wobei im Wesentlichen nur die Folgeprodukte innerhalb der Probenkörner erfasst werden. Zur zweiten Messung wird die Probe luftdicht verschlossen und für mehrere Tage gelagert, bis sich die Sättigung der Folgeprodukte auch im Porenraum ausgebildet hat. Nach 13 Tagen sind rund 90 %, nach 26 Tagen 99 % der Sättigungsintensität erreicht. Der Emanationsfaktor errechnet sich dann aus

$$E_{Rn} = \frac{I_S - I_0}{I_S},\tag{5.6}$$

mit I_0 der Anfangsintensität und I_S der Sättigungsintensität einer der Folgeproduktlinien. Neben der langen Wartezeit von mehreren Wochen liegt ein Nachteil dieser Methode in dem Messfehler, hervorgerufen durch die Statistik

des radioaktiven Zerfalls. Der absolute Fehler (1σ) bei der Bestimmung der Linienintensität liegt bei \sqrt{I} . Durch Fehlerfortpflanzung errechnet sich der absolute Fehler des Emanationskoeffizienten zu

$$\Delta E_{Rn} = \frac{1}{I_S} \left(2\sqrt{I_S} + \sqrt{I_0} - \frac{I_0}{I_S} \right). \tag{5.7}$$

Der Emanationskoeffizient der trockenen Beispielprobe "Pumex~0/10~STD" kann auf diese Weise nicht bestimmt werden. Die Linienintensitäten unterscheiden sich nicht signifikant. Erst bei einer Integrationszeit der Gammaspektren von jeweils etwa einem Monat wäre es möglich, bei dieser Probe einen Emanationsfaktor von 10^{-3} zu bestimmen.

Des Weiteren kann man mittels dieser Methode keinen Emanationskoeffizienten für Thoron bestimmen. Durch die geringe Halbwertszeit des Thoron liegt zur jeder Zeit ein Gleichgewicht mit den Folgeprodukten vor.

5.2 Messungen an Phosphorgips

Die gleichen Messmethoden und Auswertungen wurden bei einer weiteren Pulverprobe, einem Gips¹ aus Jordanien, der bei der Gewinnung von Phosphorsäure anfällt, angewandt. Dieses feinkörnige Pulver mit einer Korngröße unter einem Millimeter und einer Dichte des Pulvers von ca. $1, 5 \cdot 10^3 \,\mathrm{kg/m^3}$, zeichnet sich durch eine für Gips hohe Radium- und Thoriumkonzentration aus (Tab. 5.2).

Nuklid	$\mathrm{Bq/m^3}$	Bq/kg
226 Ra	$1,78 \cdot 10^6$	1187
$^{232}\mathrm{Th}$	$1,08 \cdot 10^6$	721

Tabelle 5.2: Gammaspektrometrisch bestimmte Radionuklidkonzentration im Phosphorgips aus Jordanien. Die Angaben sind jeweils Mittelwerte aus zwei Messungen.

Abbildung 5.4 zeigt die Ergebnisse der Exhalationsmessungen für verschiedene Feuchtigkeiten. Es fällt auf, dass keine Exhalation von Thoron zu beobachten ist. Die Vermutung, dass der niederenergetische Teil des ²¹⁴Po-Peak im Spektrum den ²¹⁶Po-Peak überdeckt, kann ausgeschlossen werden, da auch kein ²¹²Po-Peak zu sehen ist. Dies kann einerseits in einer unterschiedlichen Verteilung der Mutternuklide innerhalb des Korngefüges liegen, andererseits erreichen auf Grund der geringen Halbwertszeit von nur 55 s, und die damit verbundenen geringen Diffusionslängen, die emanierenden Thoron-Atome nicht das Messvolumen.

Die Abhängigkeit der gemessenen Emanation von der Probenfeuchte zeigt Tab. 5.3 bzw. Abb. 5.5. Bei der Bestimmung des Emanationskoeffizienten für eine Probenfeuchte von 20 Gewichtsprozent wurde eine Fehlerrechnung durchgeführt, wobei ein Absolutfehler von $\pm 0,012$ bestimmt werden konnte. Da es sich um die Messung handelt, deren Konzentrationsverlauf am stärksten streut,

¹Dank an G. Bosmans, Firma Intron B.V., Sittard, NL

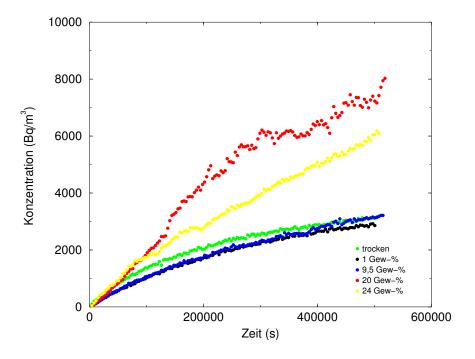


Abbildung 5.4: Exhalationsmessungen an Phosphorgips aus Jordanien in Abhängigkeit der Probenfeuchte.

wurde der so bestimmte relative Fehler von $\pm 8,5~\%$ als worst case für alle anderen Messwerte angenommen.

Feuchte (Gew%)	\mathbf{E}_{Rn}
$0,4\pm0,4$	$8,4 \cdot 10^{-2}$
$1,25\pm0,05$	$6,2 \cdot 10^{-2}$
$9,5\pm0,01$	$5,9 \cdot 10^{-2}$
$20,7\pm0,4$	$14,0 \cdot 10^{-2}$
$24,0\pm0,4$	$9.8 \cdot 10^{-2}$

Tabelle 5.3: Emanationskoeffizienten des Phosphorgipes aus Jordanien in Abhängigkeit der Probenfeuchte.

Zusätzlich wurde bei der trockenen Probe eine gammaspektroskopische Bestimmung des Emanationskoeffizienten durchgeführt. Abb. 5.6 zeigt am Beispiel 214 Pb-Peaks bei 295keV den Intensitätszuwachs. Mit Hilfe der Gleichungen (5.6) und (5.7) wurde ein Emanationskoeffizient von 0,133 $\pm0,019$ bestimmt. Gammaspektroskopisch wurde somit ein um 58% größerer Emanationskoeffizient ermittelt. Der Grund für diese Abweichung liegt wahrscheinlich in der Tatsache, dass entgegen der Annahme zu (4.9) eine inhomogene Konzentrationsverteilung in der Pulverprobe vorliegt und somit die Emanation unterschätzt wird.

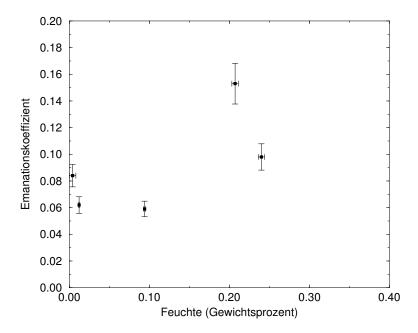


Abbildung 5.5: Plot des Emanationskoeffizienten des Phosphorgipes aus Jordanien in Abhängigkeit der Probenfeuchte.

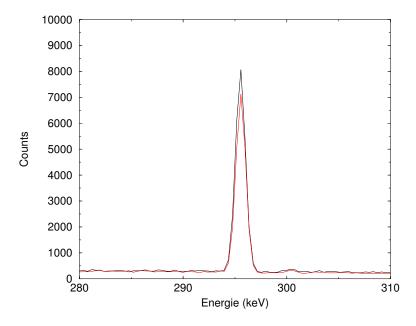


Abbildung 5.6: Gamma-Linie des Blei-214 anfänglich (rot) und nach Erreichen des Gleichgewichtes (schwarz). Messzeit jeweils 4 Stunden.

5.3 Messungen an CEM I - III

An den in Kapitel 3.2.1 beschriebenen Zementplatten unterschiedlicher Zusammensetzungen und Wasserzementwerten wurden mit Hilfe der Gleichungen 4.6 und 4.28 die Emanationskoeffizienten aus den gemessenen Diffusionskonstan-

ten und Exhalationsraten bestimmt. Tabelle 5.4 und Abbildung 5.7 geben die Ergebnisse wieder.

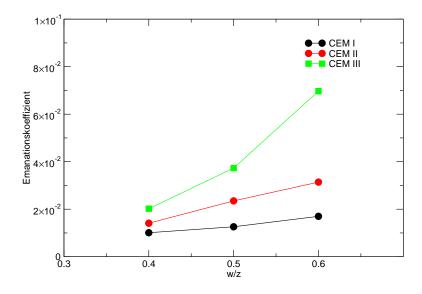


Abbildung 5.7: Emanationskoeffizienten der Zementplatten in Abhängigkeit des Wasserzementwertes.

Material	w/z	E_{Rn}
CEM I	0,4	$1,01\cdot10^{-2}$
CEM I	0,5	$1,26\cdot10^{-2}$
CEM I	0,6	$1,70\cdot10^{-2}$
CEM II	0,4	$1,41\cdot10^{-2}$
CEM II	0,5	$2,35\cdot10^{-2}$
CEM II	0,6	$3,14\cdot10^{-2}$
CEM III	0,4	$2,02\cdot10^{-2}$
CEM III	0,5	$3,73\cdot10^{-2}$
CEM III	0,6	$6,97 \cdot 10^{-2}$

Tabelle 5.4: Emanationskoeffizienten für Radon in Zementplatten in Abhängigkeit der Zusammensetzung und des Wasserzementwertes.

Der Vergleich mit den gemessenen Exhalationsraten (siehe Abb. 3.2) zeigt, dass die Exhalationsraten in diesen Proben den Anstieg der Emanation mit zunehmende w/z-Werte widerspiegeln. Die relativ großen Diffusionskonstanten und damit -längen in den Zementproben bewirken, dass die Variation der Diffusionskoeffizienten bei diesen Proben(-dicken) keine Rolle für die Exhalation des Radons spielt. Die Zunahme der Porosität (Abb. 3.3) bewirkt, dass mit

größerem w/z-Wert mehr Radonatome emanieren und damit auch exhalieren können.

Der Anstieg der Emanation zwischen den einzelnen Zementsorten legt nahe, dass im Wesentlichen der Anteil des Hüttensandes im Zement zur Radonemanation beiträgt. Hüttensand besteht aus feuerflüssiger Hochofenschlacke, die mit Wasser schnell abgekühlt wird und fein zerteilt (granuliert) wird. Der Anteil im CEM III (Hochofenzement) beträgt bis zu 80 % [93]. Durch die glatte Oberfläche des Granulates wird der Anteil der Radonatome, die den Porenraum durchfliegen und wieder in ein Korn eindringen, verringert.

5.4 Weitere Baustoffproben

Die Tabelle 5.5 zeigt weitere Ergebnisse der Bestimmung der Radonemanation. Auffällig ist die Abhängigkeit der Emanation im Falle der Keramiksteine. Mit zunehmendem Anteil von Flugasche und geringerem Anteil des Tons verkleinert sich sowohl die Exhalationsrate (vgl. Tab 9.6), als auch das Emanationsvermögen. Die Radiumkonzentrationsbestimmung bei diesen Proben legt nahe, dass in der Flugasche nennenswert Radium lokalisiert ist. Die Flugasche, die sich im Wesentlichen aus SiO₂ und Al₂O₃ zusammensetzt, fällt bei der Verbrennung feingemahlener Kohle in Form von Kugeln mit einem Durchmesser von mehreren Mikrometern (90% sind größer als 1 Mikrometer) an. Auf Grund der hohen Temperaturen bei der Entstehung besitzen diese Kugeln eine sehr glatter, verglaste Oberfläche. Da einerseits bei einer Kugel das Verhältnis Oberfläche zu Volumen am kleinsten ist, andererseits die Flugaschekugeln größer als die Rückstoßreichweite der Radonatome sind, kann bei einer gleichmäßigen Verteilung der Radiumatome nur ein geringer Anteil emanieren.

Material	E_{Rn}
Phosphorgips	$1,39 \cdot 10^{-2}$
Phosphorgips	$0,77 \cdot 10^{-2}$
Phosphorgips	$1,35\cdot10^{-2}$
Keramikstein 50/50	$1,41\cdot10^{-2}$
Keramikstein 65/35	$0.01 \cdot 10^{-2}$
Keramikstein 70/30	$(\approx 10^{-5})$
Uransand	$0,10\cdot10^{-2}$

Tabelle 5.5: Emanationskoeffizienten für Radon in weiteren Baustoffproben (vgl. Tab 9.6). Der Emanationskoeffizient des Keramiksteines 70/30 war wegen der geringen Exhalationsrate nur sehr ungenau zu bestimmen.

Kapitel 6

Theoretische Überlegungen zur Emanation

6.1 Analytische Rechnungen

Um eine Abschätzung der absoluten Größe und der Abhängigkeit der Emanation von der Korn- und Porengröße und dem Feuchtegehalt zu bekommen, wurden, basierend auf den Theorien von [92] und [94], eigene Rechnungen durchgeführt.

6.1.1 Planparallele Pore

In einem einfachen Modell werden die Pulverkörner als parallel angeordnete einzelne Halbräume, die die Pore der Ausdehnung d begrenzen, angenähert (siehe Abb. 6.1).

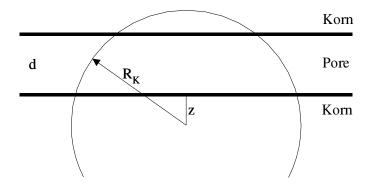


Abbildung 6.1: Skizze einer Modellpore

Zerfällt ein Radiumatom in dem unteren Korn im Abstand z von der Oberfläche, so erhält das Radonatom einen Rückstoß, der es innerhalb des Kornes (im Mittel) die Strecke R_K schleudert. Gesucht ist die Wahrscheinlichkeit, dass die Rückstoßlänge das Radonatom innerhalb der Pore endet. Da die Rückstoßlänge innerhalb der Pore R_P größer ist als im Korn, kann man dies durch

die Definition einer effektiven Dicke der Pore, die um das Verhältnis der beiden Rückstoßlängen kleiner als die wahre Porengröße ist, berücksichtigen.

$$d' = \frac{R_K}{R_P}d\tag{6.1}$$

Betrachtet man als Erstes einen Zerfall in einer bestimmten Tiefe z, so ist die Wahrscheinlichkeit, dass das Radonatom in der Pore stoppt, gleich der Fläche der Kugeloberfläche innerhalb der Pore zu der Gesamtfläche der Kugel mit Radius R_K . Dabei unterscheidet man zwei Fälle:

Fall 1: Das Radiumatom sitzt in einer Tiefe z, so dass die Rückstoßlänge ausreicht, das andere Korn zu erreichen, d.h.

$$0 \le z \le R_K - d'. \tag{6.2}$$

Die Fläche innerhalb der Pore ist eine Kugelschicht der Dicke d'. Die Mantelfläche M errechnet sich zu

$$M = 2\pi R_K d', \tag{6.3}$$

so dass die Wahrscheinlichkeit P_a sich zu

$$P_a = \frac{d'}{2R_K} = \frac{d}{2R_P} \tag{6.4}$$

ergibt. Da die Manteloberfläche einer Kugelschicht unabhängig von der Lage der Schicht ist, ist die obige Wahrscheinlichkeit unabhängig von der Größe z. Dies gilt auch, wenn die Radiumatome nur auf der Oberfläche verteilt sind, d.h. die Zerfälle nur bei z=0 auftreten. Man sieht leicht, dass die Emanationswahrscheinlichkeit proportional zu der Porendicke ist und ihren maximalen Wert von 0.5 bei $d=R_P$ erreicht.

Fall 2: Das Radiumatom sitzt so tief im Korn, dass die Rückstoßlänge nicht ausreicht, um das andere Korn zu erreichen, d.h.

$$R_K - d' \le z \le R_K. \tag{6.5}$$

Die Kugelfläche innerhalb der Pore hat die Form einer Kugelkappe der Höhe R_K-z . Die Wahrscheinlichkeit $P_b(z)$ errechnet sich zu

$$P_b(z) = \frac{R_K - z}{2R_K}. ag{6.6}$$

Es ist ersichtlich, dass wenn die Radiumatome auf der Oberfläche des Korns verteilt sind, die Hälfte der Zerfallsprodukte die Pore erreicht. Die Mittlung über alle Tiefen z unter Berücksichtigung der Randbedingungen (6.5), d.h. die Radonatome können überhaupt die Porenraum erreichen, ergibt eine mittlere Wahrscheinlichkeit von

$$P_b = \frac{d'}{4R_K} = \frac{d}{4R_P}. (6.7)$$

Ist die Porendicke maximal, also $d \geq R_P$, so erreicht auch die Wahrscheinlichkeit ihren maximalen Wert von 0,25.

Fasst man beide Fälle zusammen und berechnet die Austrittswahrscheinlichkeit P bei einer Gleichverteilung der Radiumatome, so erhält man

$$P = \frac{\int_0^{R_K} P_a + P_b(z) dz}{\int_0^{R_K} dz}$$

$$= \frac{1}{R_K} \left[\int_0^{R_K - d'} \frac{d'}{2R_K} dz + \int_{R_K - d'}^{R_K} \frac{R_K - z}{2R_K} dz \right]$$

$$= \frac{d}{2R_P} - \frac{d^2}{4R_P^2}.$$
(6.8)

6.1.2 Kugelförmiges Korn

Betrachtet man nun ein Kugel des Radius r_k , in der im Abstand d > 0 vom Mittelpunkt ein Radiumatom zerfällt. Ist die Rückstoßlänge R_k kleiner als der Kornradius r_k , können nur die Radonatome, die unter einem Winkel von maximal α_m emittiert werden, das Korn verlassen (siehe Abb.6.2). Anwendung des

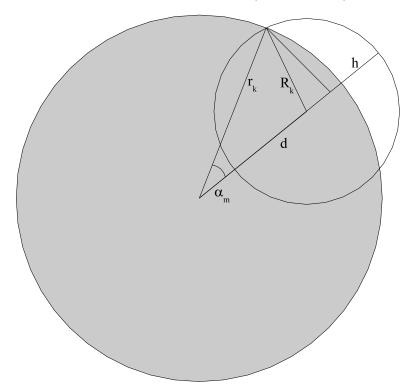


Abbildung 6.2: Skizze des kugelförmigen Modellkorns.

Cosinussatzes ergibt:

$$R_k^2 = r_k^2 + d^2 - 2r_k d\cos\alpha_m. (6.9)$$

Ebenfalls gilt:

$$\cos \alpha_m = \frac{d + R_k - h}{r_k},\tag{6.10}$$

mit h der Höhe der Kugelkappe. Die Mantelfläche der Kugelkappe M errechnet sich so zu

$$M = 2\pi R_k h$$

= $\frac{\pi R_k}{d} \left[(R_k + d)^2 - r_k^2 \right].$ (6.11)

Die Emanationswahrscheinlichkeit P_d ergibt sich dann zu

$$P_d = \frac{M}{4\pi R_k^2} = \frac{1}{4R_k d} \left[(R_k + d)^2 - r_k^2 \right]. \tag{6.12}$$

Liegt eine Oberflächenverteilung der Radiumatome vor, so errechnet sich die Emanationswahrscheinlichkeit zu

$$P_{d=r_k} = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{R_k}{2r_k} \right). \tag{6.13}$$

Man erkennt leicht den trivialen Fall, dass alle Radonatome das Korn verlassen, wenn der Durchmesser des Kornes $2r_k$ genau so groß ist wie die Rückstoßreichweite des Radons im Korn. Im Grenzfall $r_k \to \infty$ emaniert wiederum die Hälfte der Radonatome.

Bei einer homogenen Radiumverteilung muss wieder über die Dicke gemittelt werden, wobei Radonatome aus einem Abstand $d < r_k - R_k$ nicht emanieren. Man erhält

$$P = \frac{\int_{r_k - R_k}^{r_k} P_d dd}{\int_0^{r_k} dd}$$

$$= \frac{1}{4R_k r_k} \left[(r_k^2 - R_k^2) \ln \left(\frac{r_k - R_k}{r_k} \right) + r_k R_k + \frac{3}{2} R_K^2 \right]$$

$$= \frac{1}{4} + \frac{3}{8} \frac{1}{x} - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{x} - x \right) \ln \left(1 - \frac{1}{x} \right),$$
(6.14)

mit $x=r_k/R_k$ dem Verhältnis zwischen Kornradius und Rückstoßreichweite. Für den Fall, dass die Rückstoßreichweite mit dem Kornradius übereinstimmt (x=1), erhält man P=5/8=0.625, und im Grenzfall $r_k\to\infty$ strebt $P\to0.25$.

Ist die Rückstoßreichweite größer als der Kornradius (siehe Abb.6.3), so errechnet sich die Emanationswahrscheinlichkeit für ein Radonatom, welches im Abstand d vom Kornmittelpunkt entstanden ist, zu

$$P_d = 1 - \frac{1}{4dR_k} \left[r_k^2 + (R_k - d)^2 \right]. \tag{6.15}$$

Für eine Oberflächenverteilung der Radiumatome erhält man wiederum (6.13). Auch kann man leicht erkennen, dass die Emanationswahrscheinlichkeit 1 ergibt, wenn die Radiumatome in einem Abstand von weniger als $d=R_k-r_k$

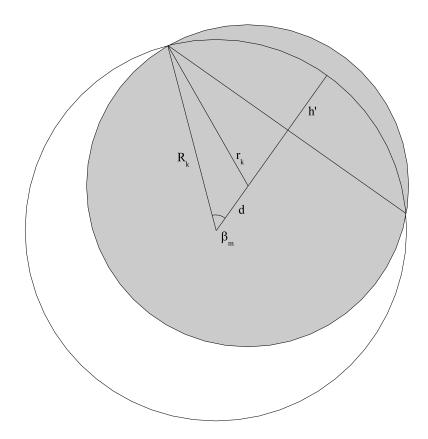


Abbildung 6.3: Skizze eines sehr kleinen kugelförmigen Modellkorns.

zerfallen. Liegt eine homogene Radiumverteilung vor, so errechnet sich die Emanationswahrscheinlichkeit zu

$$P = \frac{1}{\int_0^{r_k} dd} \left[\int_0^{R_k - r_k} dd + \int_{R_k - r_k}^{r_k} P_d dd \right]$$

$$= \frac{1}{4} + \frac{3}{8} \frac{1}{x} - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{x} - x \right) \ln \left(\frac{1}{x} - 1 \right).$$
(6.16)

Im Grenzfall $R_k\to r_k$, d.h. $x\to 1$, erhält man wiederum P=5/8, und für $R_k=2r_k$, d.h. x=0,5, wird P=1 (siehe Abb. 6.4).

Kugelförmige Pore

Im Folgenden wird die Pore als eine Kugel des Radius r_p angenähert (siehe Abb. 6.5).

In einer weiteren Näherung soll zunächst angenommen werden, dass die Rückstoßreichweite innerhalb der Pore gleich der Rückstoßreichweite innerhalb des Kornes R_k ist. Zerfällt nun ein Radiumatom im Abstand d von dem Porenmittelpunkt entfernt, so können nur Radonatome in die Pore eintreten, die in einem Winkel von weniger als α_m das Korn durchqueren. Es gilt:

$$d = r_p \cos \beta + R_k \cos \alpha_m. \tag{6.17}$$

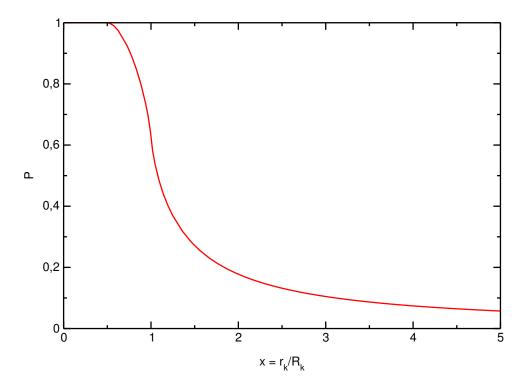


Abbildung 6.4: Emanationswahrscheinlichkeit P bei einem kugelförmigen Kornes mit homogener Radiumverteilung in Abhängigkeit des Verhältnises Kornradius zu Rückstoßweite.

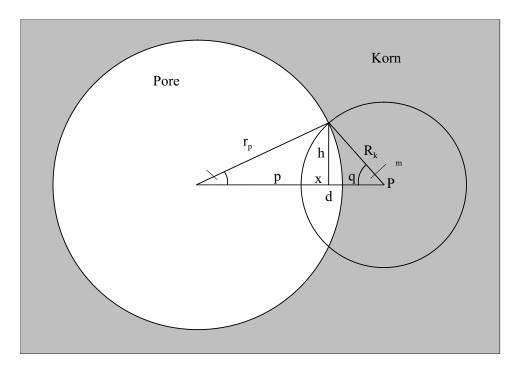


Abbildung 6.5: Skizze der kugelförmigen Modellpore.

Zusammen mit

$$\cos \beta = \frac{r_p^2 + d^2 - R_k^2}{2r_p^2 d^2} \tag{6.18}$$

erhält man

$$\cos \alpha_m = \frac{d^2 - r_p^2 + R_k^2}{2R_k d}. (6.19)$$

Die Emanationswahrscheinlichkeit ergibt sich analog zu dem Fall der planare Pore als Verhältnis der Kugelkappenfläche innerhalb der Pore zu der Gesamtkugelfläche. Die Kugelkappenfläche errechnet sich zu

$$M = 2\pi R_k x = 2\pi R_k^2 (1 - \cos \alpha_m)$$
 (6.20)

Dadurch erhält man als Emanationswahrscheinlichkeit

$$P_d = \frac{1}{2} \left(1 - \cos \alpha_m \right) = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{d^2 - r_p^2 + R_k^2}{2R_k d} \right). \tag{6.21}$$

Es ist anschaulich, dass für die Fälle $d=R_k+r_p$ und $R_k=d+r_p$ keine Emanation möglich ist. Für den Fall $d=r_p$, also für eine reine Oberflächenverteilung der Radiumatome erhält man

$$P_{d=r_p} = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{R_k}{2r_p} \right). \tag{6.22}$$

Betrachtet man in diesem Fall den Grenzwert $r_p \to \infty$, also den Fall einer planen Kornoberfläche, so erhält man für die Emanationswahrscheinlichkeit 0,5.

Sind die Radiumatome gleichmäßig im Korn verteilt, so muss man Gl. (6.21) über die relevante Tiefe mitteln. Man erhält:

$$P = \frac{\int_{r_p}^{r_p + R_k} P_d \, dd}{\int_{r_p}^{r_p + R_k} dd}$$

$$= \frac{1}{2} - \frac{1}{4R_k^2} \left[\frac{1}{2} R_k^2 + R_k r_p + \left(R_k^2 - r_p^2 \right) \ln \left(1 + \frac{R_k}{r_p} \right) \right]$$

$$= \frac{1}{2} - \frac{1}{4} \left[\frac{1}{2} + x + \left(1 - x^2 \right) \ln \left(1 + \frac{1}{x} \right) \right],$$
(6.23)

mit $x = r_p/R_k$. Auch hier erhält man für den Grenzwert $r_p \to \infty$ den schon ermittelten Wert von P = 0, 25.

Nun soll die Näherung gleicher Rückstoßreichweiten im Korn und in der Pore fallengelassen werden. Dies führt dazu, dass ein Teil der Radonatome, die in die Pore eintreten, genügend Energie haben, diese zu durchqueren. Nur diejenige Radonatome, die unter einem Winkel $\alpha \leq \alpha_g \leq \alpha_m$ in die Pore eintreten, können emanieren. Der Grenzwinkel α_g ist bestimmt durch die Bedingung, dass die verbleibende Weglänge R innerhalb der Pore gleich der Kugelsehne l ist (siehe Abb. 6.6).

Ein unter dem Winkel α wegfliegendes Radonatom legt eine Strecke r im Korn zurück, bevor es in die Pore eintritt. Es gilt

$$\cos \alpha = \frac{d^2 - r_p^2 + r^2}{2rd}. (6.24)$$

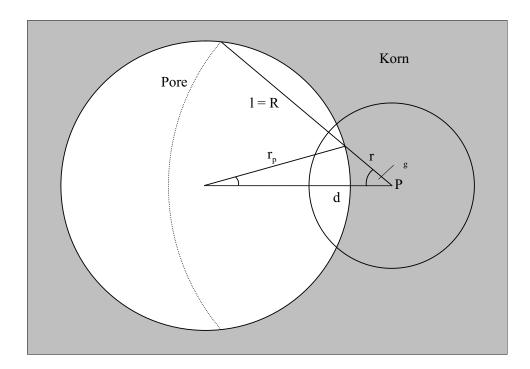


Abbildung 6.6: Skizze der kugelförmigen Modellpore mit unterschiedlicher Rückstoßreichweite.

Aufgelöst nach r erhält man

$$r_{\pm} = d\cos\alpha \pm \sqrt{d^2\cos^2\alpha - d^2 + r_p^2}.$$
 (6.25)

 r_{-} ist die Strecke, die das Radonatom im Korn zurücklegt, im Abstand r_{+} trifft die Verlängerung der Flugbahn wieder auf die Porenoberfläche. Daher gilt für l:

$$l = 2\sqrt{d^2 \cos^2 \alpha_g - d^2 + r_p^2}. (6.26)$$

Nach der Strecke r_- hat das Radonatom noch eine Restrückstoßreichweite innerhalb der Pore von

$$R = R_p \left(1 - \frac{r_-}{R_k} \right). \tag{6.27}$$

Die Bedingung l = R, aufgelöst nach $\cos \alpha_q$, ergibt

$$\cos \alpha_g = \frac{R_p^2 R_k \mp R_p \sqrt{R_k} \sqrt{a} \pm 2\sqrt{R_k^3} \sqrt{a}}{4R_k d(R_p - R_k)}.$$
 (6.28)

mit der Hilfsgröße

$$a = R_p^2 R_k + 4(R_p - R_k)(r_p^2 - d^2).$$

Auf Grund der Randbedingungen $(R_p,R_k,d,r_p\geq 0;d\geq r_p;R_p\geq R_k)$ ist die physikalisch relevante Lösung

$$\cos \alpha_g = \frac{R_p^2 R_k - R_p \sqrt{R_k} \sqrt{a} + 2\sqrt{R_k^3} \sqrt{a}}{4R_k d(R_p - R_k)}.$$
 (6.29)

Die Emanationswahrscheinlichkeit für ein Radonatom, welches im Abstand d vom Porenmittelpunkt entsteht, liegt wiederum bei

$$P_d = \frac{1}{2}(1 - \cos \alpha_g). {(6.30)}$$

Nach der Integration über die relevanten Tiefen d analog Gl. (6.23) erhält man

$$P = \frac{1}{8R_k^2(R_p - R_k)} \times \left[2R_k^2 R_p + R_p^2 R_k - 4R_k^3 - R_k \sqrt{a_2} (R_p - 2R_k) - R_k R_p^2 \ln \left(1 + \frac{R_k}{r_p} \right) \right]$$

$$+ \sqrt{R_k a_1} (R_p - 2R_k) \left(\operatorname{arctanh} \frac{\sqrt{a_1}}{\sqrt{R_k a_2}} - \operatorname{arctanh} \frac{\sqrt{a_1}}{\sqrt{R_k} R_p} \right)$$
(6.31)

mit den Hilfsvariablen

$$a_1 = 4R_p r_p^2 - 4R_k r_p^2 + R_p^2 R_k$$

$$a_2 = R_p^2 - 8R_p r_p - 4R_k R_p + 8R_k r_p + 4R_k^2$$

Der Grenzwert $R_p \to R_k$ ergibt wiederum Gl. (6.23).

6.1.3 Zylinderförmige Pore

Die Emanationswahrscheinlichkeit in zylinderförmigen Poren wurde von L. Morawska in einer "Near-Pore Model of Radium Atom Distrubution", d. h. einer Oberflächenverteilung der Radiumatome untersucht [95]. Für den Fall, dass die Rückstoßreichweite des Radons in der Pore größer als der Porendurchmesser ist, liegt die Emanationswahrscheinlichkeit bei

$$P = \frac{1}{\pi R_p^2} \int_0^{2r} \int_{\sqrt{R_p^2 - 2yr_p}}^{\sqrt{R_p^2 - y^2}} \frac{R_p}{\sqrt{R_p^2 - x^2 + y^2}} \, dx \, dy. \tag{6.32}$$

Im umgekehrten Falle eines größeren Porenradius erhält man

$$P = \frac{1}{\pi R_p^2} \int_0^{R_p} \int_{\frac{R_p^2 - x^2}{2r_p}}^{\sqrt{R_p^2 - x^2}} \frac{R_p}{\sqrt{R_p^2 - x^2 + y^2}} \, dy dx. \tag{6.33}$$

6.1.4 Fraktale Pore

Fraktale Porenoberflächen und die Folgen für die Emanation wurden von T. Semkow untersucht [87, 96]. Es wurde eine, in zwei Richtungen unendlich ausgedehnte Platte der Dicke d angenommen, die eine fraktale Oberfläche der Dimension D besitzt. Das Radium ist homogen verteilt und die Rückstosslänge beträgt R_k . Die Emanationswahrscheinlichkeit errechnet sich für den Fall $d < R_k$ zu

$$P = 1 - \frac{3 - D}{4 - D} \frac{d}{R_k} \tag{6.34}$$

und für $d \geq R_k$ zu

$$P = \frac{C}{4 - D} \left(\frac{R_k}{d}\right)^{3 - D} \tag{6.35}$$

mit C dem Krümmungskoeffizient (C = 1 bei einer Platte).

6.2 Simulationen für verschiedene Geometrien

Da nur die wenigsten Geometrien analytisch lösbar sind, wurde ein Programm in C/C++ geschrieben, was auf der Basis einer Monte-Carlo-Rechnung eine Simulation der Emanation beschreibt. Der simulierte Raum besteht aus einem Würfel mit einer Kantenlänge von 350 Felder. Diese insgesamt 42875000 Feldern können nun mit (radiumhaltigem) Gestein, Wasser oder Luft gefüllt werden, so dass sie sich durch unterschiedliche Energieverluste bzw. Reichweiten des entstandenen Radons unterscheiden (siehe Abb. 6.7). Es wurde ein linearer Energieverlust angenommen, um die Ergebnisse mit den analytischen Berechnungen zu vergleichen.

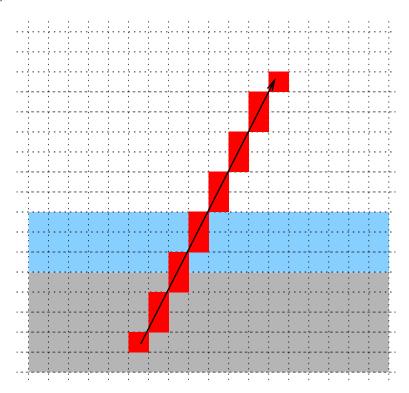


Abbildung 6.7: Prinzip der Monte-Carlo-Rechnung. Die grauen Kästchen repräsentieren das Gestein, die blauen das Wasser und die weißen Luft. Ein zufällig gewählte Rückstoßrichtung und die darauf folgende Flugbahn (Pfeil) führt durch die roten Kästchen.

Die Rückstossweite von Radon in Luft liegt zwischen $64 \,\mu\mathrm{m}$ [99] und $65 \,\mu\mathrm{m}$ [94], in Wasser bei 50nm [100] und für Gestein im Mittel bei 40nm [94]. Dementsprechend wurde für das Verhältnis der Energieverluste von Gestein:Wasser:Luft

die Werte 1:0,0008:0,0006 gewählt.

Der Entstehungsort und die Zerfallsrichtung des Radons werden entweder vorgegeben oder mit Hilfe eines Zufallszahlengenerators (Algoritmus von Park und Miller mit Bays-Durham Shuffle, ran1 aus [97]) für jeden simulierten Zerfall festgelegt. Aus Sicherheitsgründen wurde ausdrücklich nicht der systemeigene, in C implementierte Zufallszahlengenerator verwendet. Auszüge aus dem Code befinden sich im Anhang 9.4. Je nach Geometrie der simulierten Körner und Poren wurde die Symmetrie ausgenutzt und gegebenenfalls der Raum in zwei oder drei Achsen periodisch vergrößert.

Als Emanationswahrscheinlichkeit wurde das Verhältnis zwischen der Anzahl der Flugbahnen, die im Porenraum enden zu der Gesamtzahl der simulierten Zerfälle bestimmt.

Als erstes Modell wurde eine Halbebene simuliert, die sich in x- und y-Richtung periodisch wiederholt. Sind die Zerfälle nur auf der Oberfläche der Ebene lokalisiert, erhält man nach 10^6 simulierter Zerfälle einen Wert von etwa 0.498, was dem analytischen Wert von 0.5 entspricht. Bei einer gleichmäßigen Verteilung bis zu einer maximalen Tiefe, die der Rückstoßweite des Radons im simulierten Gestein entspricht, wurde ein Wert von etwa 0.257 berechnet, der auch sehr genau mit dem analytischen Wert von 0.25 übereinstimmt.

Ändert sich die Porendicke, so nimmt auch die Wahrscheinlichkeit ab, dass das Radonatom innerhalb der Pore gestoppt wird. Die Rechnung gemäß Abb. 6.1, deren Ergebnisse in Abb. 6.8 gezeigt werden, wurde mit je 100.000 Zerfällen pro Porendicke durchgeführt. Es kommt zu einigen Abweichungen zwischen den analytisch, nach Gl. (6.4) und (6.8) berechneten, und den simulierten Werten. Zu hohen d/R_P wird die Emanation überschätzt, zu kleineren Porengrößen hin unterschätzt.

In einer zweiten Simulation wurde diese Modellpore sukzessiv mit Wasser gefüllt. Dabei wurde untersucht, ob man einen Unterschied sieht, ob das Wasser als Lage auf den Körnern liegt oder als Tropfen in der Pore sitzt. Dies entspricht einer diffusionsblockierenden oder diffusionsermöglichenden Konfiguration des Porenwassers [98]. Abbildung 6.9 zeigt, dass in beiden Fällen ein linearer Zusammenhang zwischen Porenwasser und Emanationswahrscheinlichkeit zu beobachten ist. Innerhalb der Fehlergrenze der Simulation sind auch die Werte gleich.

In einer weiteren Näherung wurde die Probe durch ein kubisches Gitter von gleichgroßen Kugeln repräsentiert. Der Abstand der Kugeln blieb zunächst konstant bei $2R_K$, wobei der Radius variiert wurde (siehe Abb. 6.10).

Die Ergebnisse der Simulationen zeigt Abb. 6.11. Erwartungsgemäß sind für beide Fälle, d.h. für das trockene und für das mit Wasser gesättigte Porensystem, die Emanationswahrscheinlichkeiten bei kleinen Radien etwa 1 und nehmen bei wachsendem Kornradius ab. Im trockenen Fall ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Radonatom entweicht, schon bei $r \approx 0.21 R_K$ bei 1 %.

Sind die Kugeln dicht gepackt (vgl. Abb. 6.10 Mitte) und die Größe wird variiert, so erhält man eine interessante Abhängigkeit der Emanationswahrscheinlichkeit von dem Kornradius. Es ist anschaulich, dass für Kornradien, die gegenüber der Rückstoßreichweite groß sind, die Emanationswahrscheinlichkeit gleichmäßig im Korn verteilt entstehender Radonatome gegen Null strebt. Nur

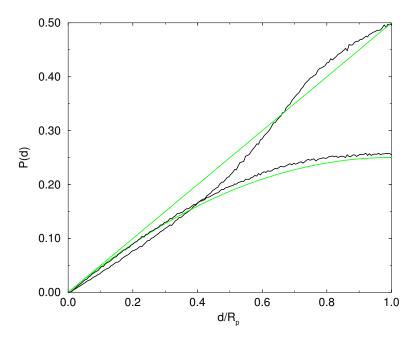


Abbildung 6.8: Analytisch berechnete (grün) und simulierte (schwarz) Emanationswahrscheinlichkeit für eine homogene Verteilung und einer Oberflächenverteilung in Abhängigkeit der auf die Rückstoßlänge normierten Porengröße.

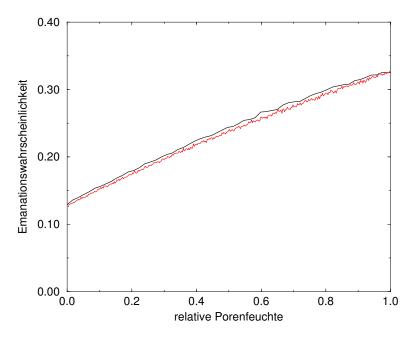


Abbildung 6.9: Berechnete Wahrscheinlichkeit der Emanation für eine homogene Verteilung der Radiumatome in Abhängigkeit der Feuchte. Die schwarze Linie ist für eine schichtförmige, die rote für eine tropfenförmige Verteilung gerechnet.

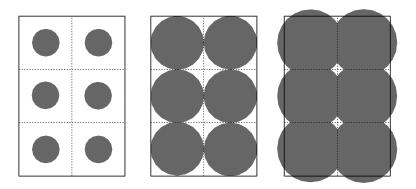


Abbildung 6.10: Schnitt ([100]-Ebene) durch ein kubisches Gitter aus Kugeln unterschiedlicher Radien. Verschmelzen die Kugeln miteinander, so nehmen die Poren eine rautenähnliche Form an.

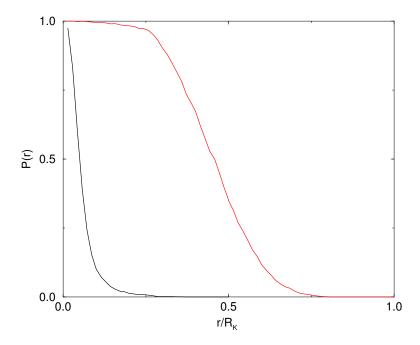


Abbildung 6.11: Emanationswahrscheinlichkeit bei einem kubischen Gitter aus Kugeln konstanten Abstandes in Abhängigkeit des Kugelradius. Die schwarze Kurve zeigt den Fall trockener, die rote den Fall mit Wasser gesättigten Poren.

der immer kleinere Anteil nahe der Kornoberfläche hat die Möglichkeit, das Korn auch zu verlassen. Dagegen liegt die Emanationswahrscheinlichkeit bei einer Oberflächenverteilung der Radiumatome um 0,5. Wenn im umgekehrten Fall die Rückstoßreichweite sich über mehrere Kornradien erstreckt, so strebt die Emanationswahrscheinlichkeit einen konstanten Wert an, da der Einfluss des Kornradius und der Radiumverteilung innerhalb des Kornes immer kleiner wird. Der interessante Teil ist der Bereich zwischen den beiden Extrema, wenn also der Kornradius in der Größenordnung der Rückstoßreichweite liegt. Abbildung 6.12 zeigt die errechnete Emanationswahrscheinlichkeit für diese Fälle.

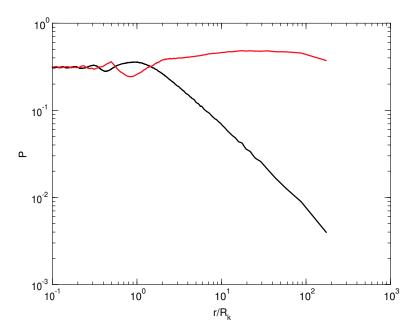


Abbildung 6.12: Emanationswahrscheinlichkeit bei einem kubischen Gitter aus dicht gepackten Kugeln in Abhängigkeit des Kugelradius. Die Poren sind mit Wasser gefüllt. Die schwarze Kurve gibt den Fall der homogen verteilten Radiumatome, die rote Kurve den Fall der ausschließlich an der Oberfläche liegenden Radiumatome wieder.

Es stellt sich heraus, dass im Grenzfall kleiner Radien die Emanationsrate bei wassergefüllten Poren gegen ca. 0,31 strebt. Des Weiteren fällt eine Oszillation auf, wenn Rückstoßreichweite und Porenradius vergleichbar groß sind. Dies ist eine Folge der schalenförmigen Verteilung der Poren in dieser Anordnung.

Sind die Poren statt mit Wasser mit Luft gefüllt, so ist die Emanationswahrscheinlichkeit um Größenordnungen geringer. Für $r/R_k \approx 10^1-10^2$ liegt die Wahrscheinlichkeit bei etwa 10^{-5} . Die zur Porengröße vergleichsweise große Rückstoßreichweite der Radonatome bewirkt, dass der Großteil der Radonatome die Poren durchquert. Erst bei Porengrößen, die in der Größenordnungen der Rückstoßrechweite in Luft liegen, kommt es zu einem nennenswerten Anteil emanierender Atome (siehe Abb. 6.13).

In der Abbildung 6.13 fallen mehrere Sachverhalte auf. In beiden Fällen, also sowohl bei einer homogenen Verteilung der Radiumatome als auch bei der ausschließlichen Oberflächenverteilung, ist der Kurvenverlauf ähnlich. Im Bereich großer Kornradien ist die Emanationswahrscheinlichkeit relativ konstant, fällt aber für Kornradien, die kleiner als die Rückstoßreichweite innerhalb der trockenen Poren sind, rapide ab. Wie im Falle der wassergefüllten Poren kommt es zu lokalen Änderungen des Kurvenverlaufes, die sich hier in Form von Stufen äußern. Die Stufen treten dann auf, wenn die Rückstoßreichweite ein Vielfaches des Kornradius ist. Auch hier liegt der Grund in der schalenförmigen Verteilung der Poren um die Körner.

Betrachtet man weiterhin Abb. 6.13, so fällt die große Abhängigkeit der

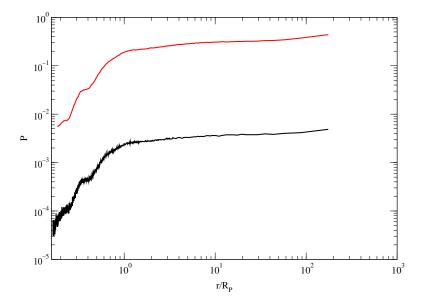


Abbildung 6.13: Emanationswahrscheinlichkeit bei einem luftgefüllten kubischen Gitter aus dicht gepackten Kugeln in Abhängigkeit des auf die Porenrückstoßreichweite normierten Kugelradius. Die schwarze Kurve gibt den Fall der homogen verteilten Radiumatome, die rote Kurve den Fall der ausschließlich an der Oberfläche liegenden Radiumatome wieder.

Radiumverteilung und die verschwindend geringe Emanationswahrscheinlichkeit für kleine Kornradien auf. Die Gründe dieses Verhaltens liegen in der sehr unterschiedlichen Rückstoßreichweiten von Radon in der Luft im Vergleich zu Wasser bzw. im Korn. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Radonatom eine Pore durchquert, ist somit wesentlich höher als die Wahrscheinlichkeit, ein Korn zu durchqueren. Dieser Unterschied ist bei einer wassergefüllten Pore nicht so deutlich. Da bei einer homogenen Radiumverteilung der Großteil der Radonatome schon in dem Korn, in dem sie entstehen, abgebremst wird, ist die Emanationswahrscheinlichkeit deutlich geringer.

Das "Rauschen" der unteren Kurve in Abb. 6.13 zeigt den statistischen Fehler der Monte-Carlo-Simulation bei 10^5 Zerfällen pro Radius.

In einer weiteren Simulation wurde das Verhalten bei zylinderförmigen Poren untersucht. Dazu wurde zuerst der Fall, dass die Zylinder dicht gepackt mit einem konstanten Abstand des doppelten Radius lagen (Abb. 6.14) untersucht. Dabei wurde wiederum zwischen einer homogenen und einer Oberflächenverteilung unterschieden. Im Falle der homogenen Verteilung der Radiumatome (schwarze Linie) ist die Emanationswahrscheinlichkeit bei $r=R_k$ bei $p\approx 0,75$ und strebt für kleinere Porenradien gegen 1. Bei einer Oberflächenverteilung werden bei $r=R_k$ etwa ein drittel der Radonatome emaniert.

Ist der Porenradius variabel, so ergibt sich eine Abhängigkeit der Emanationswahrscheinlichkeit, die in Abbildung 6.15 gezeigt wird. Mit der Unterscheidung zwischen einer Oberflächenverteilung und einer homogenen Radiumverteilung bzw. einer einzelnen Pore bzw. einer periodischen, kubischen Verteilung der Poren, ergeben sich vier Fälle:

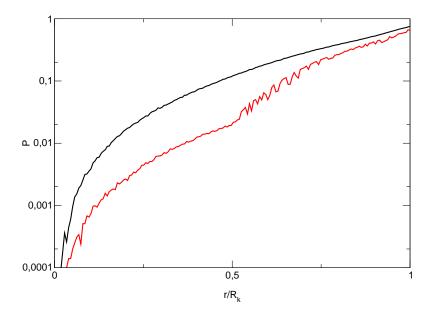


Abbildung 6.14: Emanationswahrscheinlichkeit bei einem kubischen Gitter aus wassergefüllten Zylindern in Abhängigkeit des auf die Kornrückstoßreichweite normierten Zylinderradius. Der Abstand der Zylinderporen lag bei $2 R_k$. Die schwarze Kurve gibt den Fall der homogen verteilten Radiumatome, die rote Kurve den Fall der ausschließlich an der Oberfläche liegenden Radiumatome wieder.

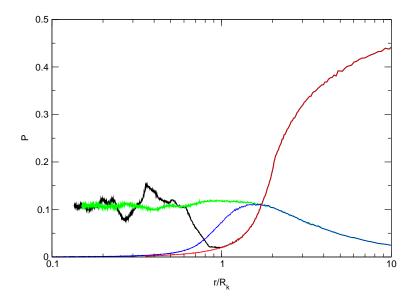


Abbildung 6.15: Emanationswahrscheinlichkeit bei wassergefüllten Zylindern in Abhängigkeit des auf die Kornrückstoßreichweite normierten Zylinderradius.

Bei einer Oberflächenverteilung der Radiumatome und einer einzelnen zylindrischen Pore (rote Kurve) strebt die Emanationswahrscheinlichkeit für große Radien gegen 0,5 (vergl. Seite 64) und für kleine Radien gegen 0, da immer mehr Radonatome die Pore durchqueren können. Sind die Poren in einem kubischen Gitter angeordnet, können auch bei – im Vergleich zu der Rückstoßreichweite – kleinen Porenradien einige Radonatome die benachbarten Poren erreichen und emanieren (schwarz). Dabei spiegelt sich die Periodizität in der Schwankung der Kurve zu kleineren Radien wieder.

Bei einer homogenen Verteilung der Radiumatome (blau: einzelne Pore, grün: kubisches Gitter) sind die Emanationswahrscheinlichkeiten bei kleinen Radien ähnlich zu den Wahrscheinlichkeiten im oberflächenverteilten Falle. Allerdings treten die Schwankungen bei der periodischen Anordnung nicht so deutlich auf. Dies liegt daran, dass durch die homogene Verteilung der Radiumatome auch die Punkte, an denen die Radonatome gestoppt werden, homogener verteilt sind. Zu großen Radien hin werden immer weniger Radonatome emaniert, da der Anteil tief im Korn zerfallender Radiumatome zunimmt.

Kapitel 7

Simulation der Diffusion und Exhalation

7.1 Einführung

In Kapitel 2.5 wurde die Probe als ein homogenes Medium betrachtet, dessen innere, ungeordnete Porenstruktur nur durch die Einführung einer effektiven Porosität beschrieben wird. Dieses Konzept lässt sich, wie in Kapitel 4.2 beschrieben, noch um die Definition der Tortuosität erweitern.

Eine Möglichkeit, Diffusion durch poröse Medien zu beschreiben und zu untersuchen, liefert die Perkolationstheorie [83]. Dabei wird die Probe durch ein gitterförmiges Porennetzwerk beschrieben. Jeder Masche und jedem Knoten können Eigenschaften, wie z.B. Radius oder Diffusionskonstante, zugeordnet werden. Allerdings sind nicht alle Knoten mit allen Nachbarknoten verbunden, sondern nur zu einer gewissen Wahrscheinlichkeit p, der Perkolationskonstante. Abbildung 7.1 zeigt vier Realisierungen von Gittern unterschiedlicher Perkolationskonstanten. Erst bei einer kritischen Größe von p, der sogenannten Perkolationsschranke p_c , bildet sich ein zusammenhängender Pfad zwischen zwei Seiten eines Netzwerkes aus. Bei einem unendlich ausgedehnten zweidimensionalem Netzwerk aus quadratischen Maschen liegt dieser kritische Punkt bei $p_c = 0, 5$. Abbildung 7.2 zeigt eine Realisierung eines Perkolationsnetzwerkes, bei dem die Maschen schwarz gefärbt sind, die mit einer Seite (hier unten) verbunden sind und in die somit von außen angebotenes Radon strömen kann. Da die Perkolationskonstante dieser Realisierung nur wenig über dem Schwellenwert liegt, ist der Pfad, der durch das gesamte Netzwerk führt und somit für die Diffusion zur Verfügung steht, an der engsten Stelle nur drei Poren groß (oberer Rand).

Diffusions-Reaktionsvorgänge wurden im Zusammenhang mit Vorgängen, wie sie in einem Katalysator ablaufen, perkolationstheoretisch behandelt, z.B. in [101]. Dabei wurde jedoch keine spontane Entstehung von Gasen betrachtet, wie sie bei der Exhalation von Radon auftritt.

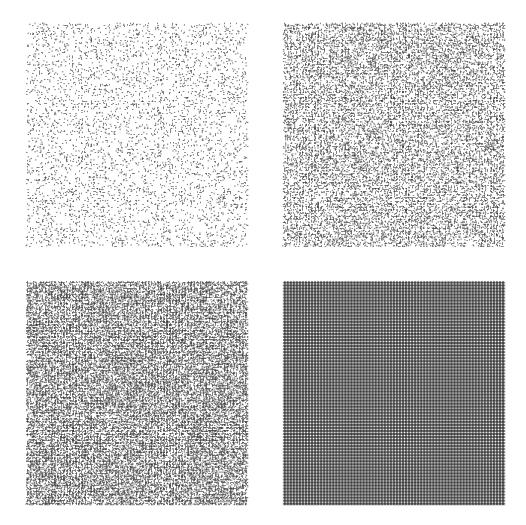


Abbildung 7.1: Realisierungen von Perkolationsgittern mit $p=0,1,\,p=0,3,\,p=0,5$ und p=1.

7.2 Umsetzung der Perkolationsrechnung

Um den Vorgang der Diffusion und Exhalation perkolationstheoretisch zu beschreiben, wurde ein Programm in C/C++ geschrieben, welches ein zweidimensionales Gitterwerk mit einer Kantenlänge von 150 Knotenpunkten generiert und die Konzentrationen innerhalb dieser Knoten sowie die Flüsse in den Poren zwischen den Knoten, auf Grund der Diffusion, Emanation und Zerfall des Radons, in Abhängigkeit verschiedener Randbedingungen simuliert. Zwischen jedem Knoten und den im Inneren vier, an der oberen und unteren Kante jeweils drei Nachbarn, verlaufen zylinderförmige Poren. An den linken und rechten Seitenflächen wurde die Probe periodisch fortgesetzt. Jeder dieser Pore kann eine Diffusionskonstante, ein Radius, eine Länge und einen Quellterm zugeordnet werden. Die Perkolation wird simuliert, in dem mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit von 1-p der Radius der Pore und damit der Fluss durch die Pore verschwindet. Für jede Pore zwischen zwei Knoten kann aus den Knotenkonzentrationen und den Fick'schen Gleichungen die Aktivitätsflussdichte

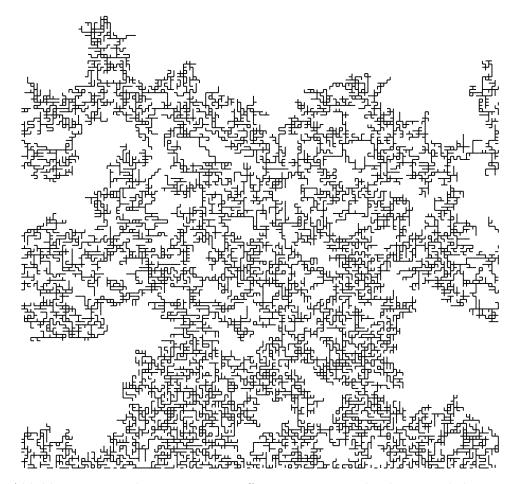


Abbildung 7.2: Realisierung eines Diffusionsvorganges durch ein Perkolationsgitter mit p=0,505. Die schwarzen Maschen zeigen die Poren an, die dem von außen (unten) angebotenen Radon zugängig sind. Das von unten angebotene Radon tritt nur durch drei Poren am oberen Rand aus.

 Φ berechnen. Der Fluss $J_{ij}=\pi r_{ij}^2\Phi_{ij}$ zwischen zwei Knoten i und j mit den Konzentrationen c_i und c_j berechnet sich so zu

$$J_{ij} = \pi r_{ij}^2 (\lambda D_{ij})^{1/2} \times \left[\frac{c_i}{\tanh(\beta_{ij}l_{ij})} - \frac{c_j}{\sinh(\beta_{ij}l_{ij})} + \frac{q_{ij}}{\lambda} \left(\frac{1}{\sinh(\beta_{ij}l_{ij})} - 1 \right) \right], \tag{7.1}$$

mit $\beta_{ij} = (D_{ij}/\lambda)^{1/2}$, Porenradius r_{ij} und -länge l_{ij} und dem Quellterm q_{ij} . Dabei ist die Symmetrie unter Vertauschung der Indizes i und j zu beachten.

Die Knoten dienen nur zur Verbindung der Poren, innerhalb der Knoten findet keine Anreicherung, kein Zerfall oder Emanation statt. Daraus folgt, dass für jeden Knoten i die Kirchhoff'sche Regel

$$\sum_{i=1}^{k} J_{ij} = 0 (7.2)$$

gilt, wobei j über die mit i verbundenen Knoten summiert. Dies führt zu einem linearen Gleichungssystem der Form

$$\mathbf{A} \cdot \mathbf{c} = \mathbf{b},\tag{7.3}$$

mit **A** einer Matrix, die die Verknüpfung der einzelnen Knoten über die Flüsse beinhaltet, der Vektor **b** die Randbedingungen, z.B. eine konstante Konzentration an den Ränder, repräsentiert und **c** der Lösungsvektor der unbekannten Knotenkonzentration darstellt. Da ein Knoten nur mit den jeweiligen Nachbarknoten verbunden ist, ist die Matrix **A** nur spärlich und bandförmig besetzt. Dieses Gleichungssystem wurde mittels einer Standardroutine für eine LU-Zerlegung einer bandförmig gefüllten Matrix gelöst (bandsec und banbks aus [97]). Pro Rechnung wurden jeweils 100 Netzwerke simuliert und als Exhalationsrate der Mittelwert der Dichten der aus den Netzwerken austretenden Flüsse berechnet. Im Anhang 9.5 befindet sich das Programm, angepasst für die Berechnung der Exhalation bei variierender Diffusionskonstante innerhalb der Poren.

7.3 Ergebnisse

In einer ersten Simulation wurde der Einfluss der Konzentrationsdifferenz auf die Diffusion durch das vollständige Porennetzwerk, d.h. für p=1, betrachtet. Dazu wurde an den eintretenden Poren eine konstante Radonkonzentration angelegt. Innerhalb der Poren fand keine Emanation statt $(q_{ij} \equiv 0)$. Der Radonfluss durch das Netzwerk ist linear abhängig von der angelegten Konzentrationsdifferenz (siehe Abb. 7.3). Dies lässt sich auch leicht aus (7.1) ersehen, da hier die angelegten Konzentrationen linear eingehen und sich dieses durch die Lösung des Netzwerkes (lineares Gleichungssystem) nicht ändert. Dies entspricht auch dem Verhalten, dem man bei einem makroskopisch homogenen System gemäß den Fick'schen Gesetzten erwarten würde.

Der Einfluss der Perkolationskonstante auf den Fluss durch das Netzwerk ist in Abb. 7.4 abgebildet. Es wurde die Exhalationsrate in Abhängigkeit der Perkolationskonstante für drei verschiedene d/R-Verhältnisse berechnet, wobei d die makroskopische Dicke der Probe, d.h. die Länge von 150 Maschen, darstellt und die Diffusionslänge R sich aus der Diffusionskonstante für den homogenen Fall p=1 berechnet. Die Exhalationsrate wurde auf den jeweils maximalen Wert bei p=1 normiert. Die Fehlerbalken geben die Standardabweichung des Mittelwertes über die je 100 Realisierungen wieder. Unterhalb der Perkolationsschwelle, d.h. für $p=p_c=0,5$ verschwindet der Fluss, da sich kein durchgehender Diffusionspfad ausbildet. Zwischen $0,5 \le p \le 0,65$ ändert sich der Fluss über mehrere Größenordnungen, danach nur noch geringfügig.

Die Stärke der Abhängigkeit hängt von dem Diffusionskoeffizienten bzw. der Diffusionslänge ab. Je kleiner dieser wird, umso empfindlicher reagiert das System auf Änderungen von p. Diese Abhängigkeit ist in Abb. 7.5 gezeigt. Es ist ersichtlich, dass besonders für große Diffusionslängen (d.h. Diffusionskoeffizienten) die Kurven ähnlich verlaufen. In diesem Bereich spielt der Einfluss der Perkolationskonstante keine große Rolle mehr, da schon wenige Verbindungen

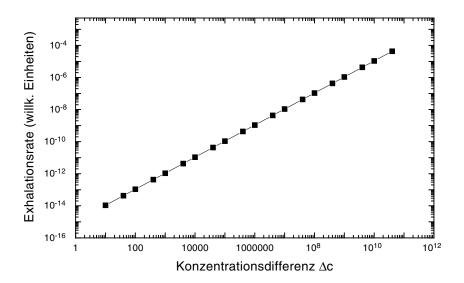


Abbildung 7.3: Abhängigkeit der Flussdichte durch ein Perkolationsgitter mit p=1 von der angelegten Konzentrationsdifferenz.

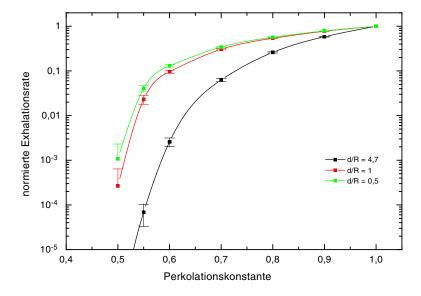


Abbildung 7.4: Auf die jeweilige Flussdichte bei p=1 normierte Exhalationsrate durch ein Perkolationsgitter in Abhängigkeit der Perkolationskonstante. Das Verhältnis d/R bezieht sich hier auf den homogenen Fall von p=1.

ausreichen, um einen großen Radontransport durch die Probe sicherzustellen. In diesem Bereich lässt sich eine Skalenabhängigkeit bestimmen zu

$$\Phi \sim (d/R)^{-s},\tag{7.4}$$

mit $s \approx 2$ für p = 0, 6 und $s \approx 1, 7$ für p = 1

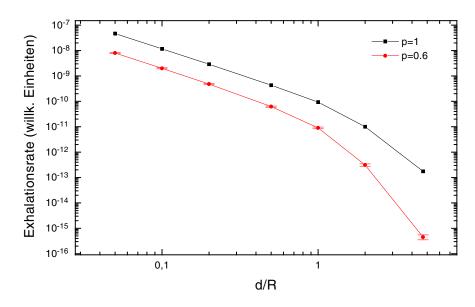


Abbildung 7.5: Flussdichte durch ein Perkolationsgitter in Abhängigkeit von d/R.

Betrachtet man reine Exhalationsvorgänge, d.h. es werden keine Konzentrationen an die äußeren Kanten des Netzwerkes gelegt, aber dafür ein Quellterm eingeführt, ergibt sich im Vergleich zur Diffusion ein differierendes Bild. Da der Quellterm q als additiver Term in die Differenzialgleichung eingeht, ist auch die Lösung linear in q. Abbildung 7.6 zeigt diese lineare Abhängigkeit der Exhalationsrate vom Quellterm q exemplarisch für p=1 und für p=0,5, wobei beidesmale d/R=1 gewählt wurde. Auch hier geben die Fehlerbalken bei p=0,5 die Standardabweichung des Mittelwertes über die je 100 Realisierungen wieder.

Des Weiteren hängt die Exhalation nicht davon ab, ob ein durchgehender Pfad innerhalb des Netzwerkes existiert. So kommt es schon bei einer Perkolationskonstante kleiner dem Schwellenwertes, d.h. für $p \leq p_c$, zu einer endlichen Exhalationsrate. Um p_c ändert sich die Abhängigkeit allerdings von einer exponentiellen zu einem mehr linearen Verlauf (Abb. 7.7). Um dies zu verdeutlichen, ist die Exhalationsrate in der kleinen Darstellung in Abbildung 7.7 linear skaliert.

Der Einfluss der Diffusionskonstante bzw. der –länge wird in Abbildung 7.8 gezeigt. Man sieht, dass sich die Exhalationsrate im Bereich ab d/R=0,1 sich schnell um mehrere Zehnerpotenzen verringert, wobei die Perkolationskonstante in diesem Bereich kaum eine Rolle spielt. Zur Exhalation steht ein immer geringerer Teil der Probe zur Verfügung, da die Diffusionslänge immer kleiner wird. Dagegen liegt im Bereich großer Diffusionslängen immer der gesamte,

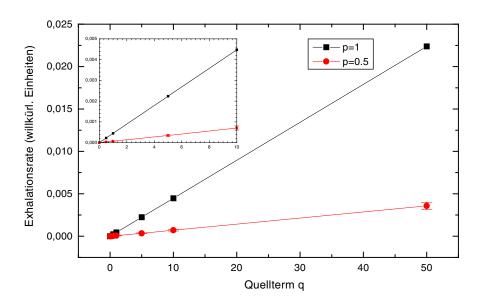


Abbildung 7.6: Abhängigkeit der Exhalationsrate von dem Quellterm q.

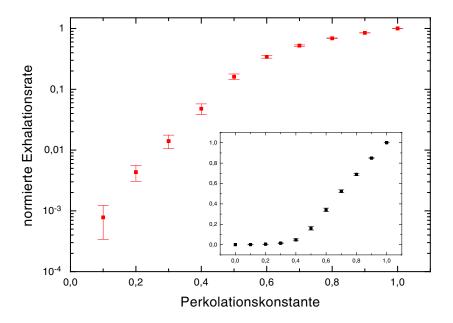


Abbildung 7.7: Abhängigkeit der Exhalationsrate von der Perkolationskonstante p. Die logarithmische Skalierung der Abbildung zeigt den exponentiellen Anstieg der Exhalationsrate im Bereich p<0,5. Die kleine Abbildung ist zur Verdeutlichung des linearen Anstieges ab $p\approx0,5$ linear skaliert. Normiert wurde auf die maximale Exhalationsrate bei p=1.

von außen zugängige Porenraum als Quelle der Exhalation vor. Die Größe dieses Porenraumes wird durch die Perkolationskonstante beeinflusst. Bei einer

Perkolationskonstante unter dem Schwellenwertes nimmt daher die Exhalation deutlich mit der Perkolationskonstante ab.

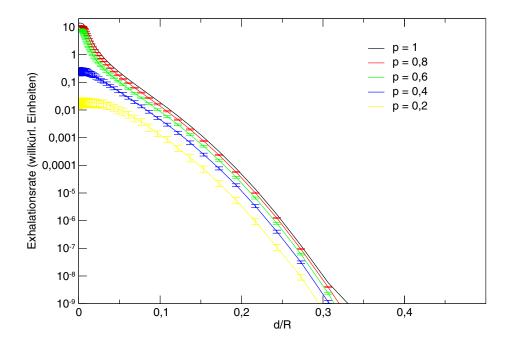


Abbildung 7.8: Exhalationsrate eines Gitternetzwerkes in Abhängigkeit von dem Verhältnis d/R für verschiedene Perkolationskonstanten p.

Überträgt man diese Modellrechungen auf die Experimente und Untersuchungen an Baustoffen, so sieht man die deutliche Abhängigkeit der Transporteigenschaften von der Größe der miteinander verbundener und insbesondere mit der Außenseite verbundener Porensysteme, hier modelliert durch die Perkolationskonstante. Diese Abhängigkeit der Diffusionskonstante und Exhalationsrate von der effektiven Porosität wurde in den Experimenten gezeigt. In einem dreidimensionalen System, wie es ein Baustoff darstellt, wird sich ein Diffusionspfad schon früher bilden, da die Poren mehr Nachbarn haben können als in einem zweidimensionalen Gitter. So liegt die Perkolationsschwelle bei einem kubischen Gitter bei 2,488 [83]. Dass die Porosität als Parameter nicht ausreicht, sieht man z.B. an Schaumplatten, die eine hohe Porosität besitzen, aber alle Poren sind geschlossen und es bildet sich kein durchgehender Diffusionspfad aus. Die Perkolationsschranke gilt strenggenommen nur für unendlich ausgedehnte Systeme. Bei Netzwerken endlicher Größe kann es auch fur Perkolationskonstanten $p < p_c$ es zu einem durch die Probe führenden Diffusionspfad kommen. Je dünner die Probe, umso wahrscheinlicher ist dies. Und Inhomogenitäten innerhalb der Proben, wie z.B. einzelne Schäden oder mangelnde Verdichtung bei der Herstellung führen auch zu einer frühzeitigen Ausbildung von Diffusionswegen bzw. einer Vergrößerung des Porensystemes, aus dem Radon exhalieren kann.

Kapitel 8

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden das Entstehen und der Transport von Radon innerhalb von Baustoffen und fertigen Bauwerksteilen untersucht. Dies geschah einerseits an Messungen in Materialproben, Modellwänden und an Häusern, als auch durch theoretische Betrachtungen.

Die Messungen an den Häusern im "radonbelasteten" Gebiet Schiffweiler und die Untersuchungen an einem Haus in Donsieders zeigen, dass die neueren Baustoffe und Verarbeitungsmethoden, die zur Feuchteisolierung eingesetzt werden, ausreichen, Radon wirksam am Eindringen in die Wohn- und Kellerräume zu hindern. Mit Hilfe von Langzeitdetektoren, die ein Jahr lang exponiert wurden, wurden die Innenraumkonzentrationen der Häuser bestimmt. In unmittelbarer Nähe der Häuser, d.h. im Garten und Vorgartenbereich wurden Bodenluftmessungen durchgeführt, um für jedes Haus individuell das Radonangebot des Bodens zu bestimmen. Somit konnte für jedes einzelne Haus einen Radontransferfaktor, d.h. der Anteil des von außen durch die erdberührenden Bauteile in die Innenräume eindringenden Radons ermittelt werden. Bei keinem der untersuchten Häusern wurden Radonwerte gemessen, die oberhalb des Richtwertes der Strahlenschutzkommission lagen. Die Verarbeitung der Isolierung spielt dabei eine besondere Rolle. Nur eine fachgerechte und normkonforme Verarbeitung gewährt den Schutz. Besondere Maßnahmen bei Neubauten zum Schutz gegen Radon ist in dem untersuchten Gebiet bis zu einer maximalen Bodenluftkonzentration von ca. 100 kBq/m³ nicht notwendig.

Der Einfluss der Feuchteisolierung auf die Radonmigration innerhalb der Wände konnte auch an der Modellhausecke verifiziert werden. Die Wandbildner alleine reichen für einen wirksamen Schutz nicht aus, da einerseits die Materialien Diffusionslängen aufweisen, die die Dicke bei Weitem übertreffen, und andererseits die Fugen zwischen den Steinen einen ungehinderten Radontransport ermöglichen. In diesem Zusammenhang sind besonders die profilierten Porotonund Liaporsteine zu nennen, bei denen keine Stoßfugenvermörtelung vorgesehen sind. Auch die Kombination von Mauer und Isolierung ergaben Diffusionslängen, die weit über der Dicke der Wand lagen. Sie sind bei der strengen Anwendung der Definition von Radondichtheit (Mindestdicke größer als dreifache Radondiffusionslänge) als nicht radondicht zu bezeichnen. Allerdings mindern sie den Radontransport ausreichend, um bei mittleren Radonboden-

luftkonzentrationen einen ausreichenden Schutz zu gewähren.

Labormessungen an Proben von Isolationsmaterialien und Materialkombinationen zeigten ein uneinheitliches Bild. Nicht alle feuchteisolierenden Materialen sind unter Laborbedingungen radondicht. Insbesondere die Bitumenschweißbahnen zeigen eine hohe Variabilität der Diffusionskonstanten. Auch gibt es unter den zweikomponentischen Dickbeschichtungen Proben, die als nicht radondicht einzustufen sind. Es ist also nicht möglich, eine generelle Aussage zu einer Produktgruppe aufzustellen. Eine individuelle Messung jedes Produktes ist notwendig, wenn es speziell zur Radonisolierung eingesetzt werden soll. Dabei muss auf die Probenpräparation, dem Probenalter und die Lagerung geachtet und diese bei der Bewertung berücksichtigt werden. Grundsätzlich sollten Fugenbereiche untersucht werden, um auch die Dichtheit der zugehörigen Fugentechnik zu erfassen.

Es wurden durch Messungen der Exhalationsrate die Emanationskoeffizienten von Radon und Thoron in ausgewählten Proben bestimmt. Dies gelang selbst bei Materialien mit geringem Radiumgehaltes, bei denen gammaspektroskopische Methoden dies im zeitlich vertretbaren Rahmen nicht erlauben. Es konnten Emanationskoeffizienten bis unterhalb einer Promille gemessen werden. Bei der Untersuchung der Feuchteabhängigkeit der Emanation wurde die Löslichkeit des Radons in dem Porenwasser mit berücksichtigt. Eine deutlicher Unterschied zwischen der Emanationsrate von Radon-222 und Radon-220 konnte beobachtet werden, der sich aus dem Zusammenspiel der unterschiedlichen Halbwertszeiten, Rückstoßweiten und Verteilung der Mutternuklide innerhalb des Kornes erklären lässt.

Berechnungen und Simulationen der Emanation an Modellporen und -körner zeigen, dass selbst bei einfachen Geometrien die Emanation empfindlich auf das Verhältnis zwischen Rückstoßweite und Poren- bzw. Korngröße reagiert. Auf Grund des großen Unterschiedes in der Rückstoßweiten zwischen Wasser und Luft ermöglicht die Porenfeuchtigkeit in Mikroporen oft erst eine Emanation, da sie das Wiedereindringen in Nachbarkörner verhindert. Die geringe Rückstoßreichweite innerhalb eines Kornes bewirkt eine starke Abhängigkeit von der Nuklidverteilung.

Es wurde Diffusions- und Exhalationsvorgänge des Radons mittels eines Perkolationsnetzwerkes untersucht. Dabei fällt die starke Abhängigkeit der Transportvorgänge von der zum Transport zur Verfügung stehenden Porenraumes, hier simuliert durch die Perkolation, auf. Im Falle der Diffusion ist kein Transport in Netzwerken mit Perkolationskonstanten unterhalb des Schwellenwertes möglich. Überhalb des Schwellenwertes reagieren die Flüsse durch die Netzwerk empfindlich auf die Änderungen der Perkolationskonstante. Dabei nimmt der Einfluss der Perkolationskonstante mit zunehmender Diffusionslänge ab. Der Transport durch das Netzwerk ist linear zur angelegten Konzentrationsdifferenze. Betrachtet man Exhalationsvorgänge ohne von außen angelegte Konzentrationsdifferenzen, so bildet sich schon bei kleinen Perkolationsnetzwerken ein endlicher Fluss aus der Probe aus, der unterhalb der Perkolationsschranke einen exponentielle, überhalb der Schranze eine eher lineare Abhängigkeit von der Perkolationskonstante zeigt. Bei großen Diffusionsweiten ist der Einfluss am deutlichsten.

Kapitel 9

Anhang

9.1 Fragebogen

- 1. Das Haus ist ein
 - 1) Einfamilienhaus
 - 2) Zweifamilienhaus
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 2. In welchem Stockwerk liegt das Wohnzimmer?
 - 1) im Keller
 - 2) im Erdgeschoss
 - 3) im 1. Obergeschoss
 - 4) im 2. OG oder höher
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 3. Wann wurde das Haus gebaut?

Im Jahr 19__

- 4. Steht das Haus an einem Hang?
 - 1) ja
 - 2) nein
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 5. Welcher Lastfall wurde beachtet?
 - 1) nichtdrückendes Wasser
 - 2) drückendes Wasser
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 6. Wie ist der Boden um das Haus beschaffen?

- 1) wasserdurchlässig (nichtbindig, z.B. Sand)
- 2) wasserdicht (bindig, z.B. Lehm)
- 9) ich bin mir nicht sicher
- 7. Wie wurde das Haus hinterfüllt?
 - 1) Schotter
 - 2) Kieselsteine
 - 3) Bauaushub
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 8. Wurde unterhalb der Bodenplatte eine Drainage verlegt?
 - 1) ja
 - 2) nein
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 9. Ist die ganze Grundfläche des Hauses unterkellert?
 - 1) ja
 - 2) nein, nur teilweise
 - 3) nein, es ist gar nicht unterkellert
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 10. Ist der Keller von Außen gegen Feuchtigkeit isoliert?
 - 1) ja, rundherum
 - 2) ja, aber nur teilweise
 - 3) nein, gar nicht
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 11. wenn ja, wie?
 - 1) Bitumendickbeschichtung
 - 2) flexible Dichtungsschlämme
 - 3) anders:
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 12. Wie ist diese Abdichtung geschützt?
 - 1) zweite Lage von Mauerwerk
 - 2) Beton, Betonplatten
 - 3) Mörtel
 - 4) Gussasphalt

- 5) Noppenbahnen
- 6) anders:
- 9) ich bin mir nicht sicher
- 13. Woraus bestehen die Kellerwände?
 - 1) Ziegelstein
 - 2) Kalksandstein
 - 3) Naturstein
 - 4) Bimsstein
 - 5) Leichtbeton
 - 6) Normal- oder Schwerbeton
 - 7) verschiedene Materialien
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 14. Woraus besteht die horizontale Abdichtung am Wandfußpunkt?
 - 1) Bitumen-Dachdichtungsbahnen
 - 2) Kunststoff-Dichtungsbahnen
 - 3) mineralische Dichtungsschlämme
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 15. Hat das Haus einen Betonboden?
 - 1) ja, er ist aus einem Stück gegossen
 - 2) ja, die Räume sind einzeln betoniert
 - 3) ja, nicht alle Räume sind betoniert
 - 4) nein, es hat gar keinen Betonboden
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 16. Liegt ein Estrichboden im Keller?
 - 1) ja
 - 2) nein
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 17. Sind Risse oder Absenkungen am Haus aufgetreten?
 - 1) ja
 - 2) nein
 - 9) ich bin mir nicht sicher
- 18. Ist Bodenfeuchtigkeit in das Haus eingetreten?

- 1) ja, häufig
- 2) ja, gelegentlich, z.B. nach starken Regenfällen
- 3) nein
- 9) ich bin mir nicht sicher

9.2 Tabellen

										Frage	- Nr							
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
1	1	2	97	2	1	2	3	2	1	1	1	6	4	1	1	1	2	2
2	1	2	97	1	9	9		1	1	2	1	6	6	1	1	1	1	3
3	1	1	99	1	1	2	1	1	1	2	2	1	1	1	1	1	2	3
4	2	2	97	1	1	1	1	1	1	1	3	5	6	9	1	1	2	3
5	1	1	98	1	1	1	2	2	1	1	1	5	4	1	1	1	2	3
6	1	2	97	2	1	9	3	1	3	2	1	5	4	1	1	1	2	3
7	1	2	99	1	1	1	3	2	1	1	1	6	6	1	1	1	2	3
8	2	1	98	1	2	2	3	1	1	1	1	5	6	1	1	1	2	3
9	1	2	99	1	1	2	3	1	1	1	1	1	6	9	1	1	2	3
10	1	2	98	2	2	2	9	2	1	1	1	9	6	9	1	1	2	3
11	1	1	95	2	9	2	2	2	1	1	1	6	6	1	1	1	2	3
12	2	1	98	1	2	2	3	1	1	1	1	5	6	1	1	1	2	3
13	1	2	95	1	1	1	2	9	1	1	1	9	9	9	1	1	2	3
14	1	2	90	1	2	2	3	1	1	1	1	6	4	1	1	1	2	2
15	1	2	98	2	1	2	1	1	1	1	1	5	6	1	1	1	2	3
16	1	1	96	1	9	1	1	2	1	2	1	1	4	1	1	1	2	3
17	1	2	87	2	9	2	1	1	1	1	1	5	2	1	1	1	2	3
18 19	1 1	$\frac{2}{2}$	88 97	$\frac{2}{2}$	9	$\frac{2}{2}$	9	$\frac{1}{2}$	1 1	1 1	1 1	5 9	9	9	1 1	1 1	$\frac{2}{2}$	$\frac{3}{3}$
20	2	3	98	1	9	1	3	$\frac{2}{2}$	1	1	1	9	6	9	1	1	$\frac{2}{2}$	3
$\frac{20}{21}$	$\frac{2}{2}$	3 1	98 98	1	9	1	3	1	2	1	1	6	7	9	1	1	$\frac{2}{2}$	3
$\frac{21}{22}$	$\frac{2}{2}$	2	98	1	9	9	1	$\frac{1}{2}$	1	2	3	6	7	9	1	1	2	3
$\frac{22}{23}$	1	3	92	2	9	$\frac{3}{2}$	2	$\frac{2}{2}$	3	3	_	_	5	9	2	2	2	3
$\frac{23}{24}$	1	2	98	2	9	1	9	2	3	3	_	_	9	1	1	1	1	3
25	1	2	99	1	9	2	2	1	1	1	1	6	2	1	1	1	2	3
26	1	$\overline{2}$	98	$\overline{2}$	9	1	9	$\overline{2}$	3	3	_	_	9	1	1	1	1	3
27	2	2	96	2	1	2	3	2	1	1	1	5	1	9	1	1	2	1
28	1	2	95	1	1	1	3	1	1	1	1	5	1	1	1	1	2	3
29	2	1	95	2	2	2	2	2	1	1	1	5	6	1	1	2	2	3
30	1	2	90	1	1	2	1	1	1	1	1	6	1	1	1	1	2	3
31	1	2	88	1	1	1	9	1	1	1	1	5	6	9	1	1	2	3
32	1	2	96	1	1	1	2	9	1	1	1	9	9	9	1	1	2	3
33	2	3	98	1	1	2	3	1	1	2	1	5	6	1	1	2	2	3
34	2	2	97	1	1	2	2	1	1	1	1	6	7	1	1	1	2	3
35	1	2	94	2	1	2	3	2	1	1	1	5	2	1	1	1	2	3
36	1	2	96	1	1	1	1	1	1	1	1	5	6	9	1	1	2	3
37	2	1	93	1	1	2	1	2	1	1	1	6	6	1	1	1	2	3

Tabelle 9.1: Auswertung des in den untersuchten Gebäuden verteilten Fragebogens.

```
Nr.
     Bemerkungen zu den Fragen
     7: Kieselsteine, 11: Dichtungsschlämme, 6: Drainstyropor
 1
 2
     12: Geodrainfolie
 3
     ökologisch gebaut
     11: mit Beton ausgegossene Styroporteile, 15: Pfahlgründung
 5
 6
     13: Liapor
 7
     12: Herodur, Hohlkammerziegeln
 8
     12: beschichtete Drainageplatten
 9
 10
    - -
 11
     12: Styroporplatten
 12
     12: beschichtete Drainageplatten
 13
14
    18: Verkieselung 1993
 15
     12: Styroporplatten, 13: Hohlbetonsteine
 16
     8: Fundamentgründung
 17
     13: auch Bimsstein
 18
    - -
 19
    - -
20
    - -
21
     7: Schotter, 12: Styropor
     Technoterm, Styroporelemente, die mit Beton ausgegossen wer-
23
     Nicht gegen Feuchtigkeit isoliert
24
25
    12: Styroporplatten
26
27
     12: Drainplatten
28
29
     12: Styropor, 16: teilweise
30
     12: Styrodrain
31
32
    - -
33
34
    13: auch Poroton, 12: auch Noppenbahnen
35
36
     7: Sand
37
     12: Styropor
```

Tabelle 9.2: Besonderheiten der ausgewerteten Häuser als Anmerkungen zu den Fragen in den Fragebögen.

Nr.	Keller	Bemerkung	Wohnzimmer	Bemerkung
	(Bq/m^3)		$(\mathrm{Bq/m^3})$	
1	57		54	
2	54		48	
3	98	über Bodenplattenöffnung	73	Küchenbereich
4	60		46	
5	77	Küchenbereich	66	
6	68		51	
7	114		47	
8	68		63	Kellerniveau
9	71		48	
10	51		74	
11	74		69	Kellerniveau
12	63		63	
13	69		49	
14	76		65	
15	106	über Bodenplattenöffnung	78	
16	104		117	
17	57	Einliegerwohnung	46	
18	54		69	
19	43		54	
20	Verloren	Wohnung, Picorad: 8 Bq/m ³	37	
21	Verloren	Picorad: 28 Bq/m ³	Verloren	Picorad: 4 Bq/m ³
22	72		52	
23	51		40	
24	54		77	
25	89		54	
26	63		69	
27	49		57	
28	69		60	
29	54		52	
30	49		43	
31	61		55	
32	Verloren	Picorad: $<1,5 \text{ Bq/m}^3$	100	
33	43		52	
34	Verloren	Picorad: $<1.5 \text{ Bq/m}^3$	43	
35	107		208	
36	120		245	
37	90	Kellerwohnung	64	

Tabelle 9.3: Gemessene Innenraumkonzentration in Ein- und Zweifamilienhäusern in Schiffweiler.

Nr.	Konzentration	Bemerkung	Transferrate
	$(\mathrm{Bq/m^3})$		(10^{-3})
1	<3		>19,0
2	<3		>18,0
3	<3	Hang aufgeschüttet, wasserführende Schicht	> 32,7
4	< 3		> 20,0
5	6	Oftmals stehendes Wasser im Garten	12,8
6	< 3		> 22,7
7	< 3		> 38,0
8	55		1,2
9	49		1,4
10	50		1,5
11	57		1,3
12	55		1,1
13	< 3		> 23,0
14	21		3,6
15	89	Bruchspalten im Garten	1,2
16	93	Nähe zu Bruchspalten	1,3
17	< 3		> 19,0
18	< 3		> 23,0
19	< 3		> 18,0
20	< 3		> 12,3
21	< 3		_
22	< 3		> 24,0
23	< 3		> 17,0
24	8	Oftmals stehendes Wasser im Garten	9,6
25	< 3	Oftmals stehendes Wasser im Garten	> 29,7
26	10	Oftmals stehendes Wasser im Garten	6,9
27	< 3		> 19,0
28	< 3	Garten aufgeschüttet, darunter Garage	> 23,0
29	8		6,8
30	86	Bruchspalten im Garten	0,6
31	12		5,1
32	76		1,3
33	84		0,6
34	25		1,7
35	73		2,8
36	87	Bruchspalte im Garten	2,8
37	41		2,2

Tabelle 9.4: Gemessene Bodenluftkonzentration und daraus bestimmte Transferraten (Quotient aus minimaler Raum- und maximaler Bodenluftkonzentration) in Ein- und Zweifamilienhäusern in Schiffweiler.

Art	Dicke	Diff.koeff.	Diff.länge	d/R	dicht
Alt	d (mm)	(m^2/s)	R (mm)	u/It	dicii
Betonplatte, CEM I, w/z 0,4	50	$3.6 \cdot 10^{-9}$	42	1,19	nein
Betonplatte, CEM I, w/z 0,5	50	$1,3\cdot10^{-8}$	79	0,63	nein
Betonplatte, CEM I, w/z 0,6	50	$5,0.10^{-8}$	155	0,32	nein
Betonplatte, CEM II, w/z 0,4	50	$5,2\cdot 10^{-9}$	50	1,00	nein
Betonplatte, CEM II, w/z 0,5	50	$1,6\cdot10^{-8}$	87	0,57	nein
Betonplatte, CEM II, w/z 0,6	50	$6,1\cdot10^{-9}$	171	0,29	nein
Betonplatte, CEM III, w/z 0,4	50	$4.3 \cdot 10^{-9}$	45	1,11	nein
Betonplatte, CEM III, w/z 0,5	50	$1,4\cdot 10^{-8}$	81	0,62	nein
Betonplatte, CEM III, w/z 0,6	50	$3,5\cdot10^{-8}$	130	0,38	nein
2-komp. PCC Trockenbeton BE 0/4	40	$1,14\cdot10^{-10}$	7,38	5,42	ja
2-komp. PCC Trockenbeton BE 0/8	40	$1,71 \cdot 10^{-10}$	9,02	4,43	ja
PEHD-Dichtbahnmaterial	0,2	$7,08\cdot10^{-12}$	1,84	0,11	nein
Dichtungsbahn, PEHD	1,5	$8,21\cdot10^{-14}$	0,20	7,58	ja
Isolierfolie, PEHD, geklebt o. geschweißt	0,16	<nwg< td=""><td>_</td><td>_</td><td>ja</td></nwg<>	_	_	ja
PE-Folie	0,6	$3,32\cdot10^{-12}$	1,26	0,47	nein
LDPE-Folie	1,0	$3,16\cdot10^{-12}$	1,23	0,81	nein
PE/Al/PE-Folie	1,0	<nwg< td=""><td></td><td></td><td>ja</td></nwg<>			ja
S4G200 Bitumenschweißbahn	4	$5,30\cdot10^{-8}$	159	0,03	nein
V60S4 Bitumenschweißbahn	4	$3,59 \cdot 10^{-8}$	131	0,03	nein
Dichtungsfolie, bitumenbesch.	4	$1,17\cdot10^{-12}$	0,75	5,37	ja
selbstklebende Dichtungsbahn	1,7	<nwg< td=""><td>_</td><td>_</td><td>ja</td></nwg<>	_	_	ja
Flexibl. Dichtungsschlamm, 1-ko.	2	$7,54 \cdot 10^{-13}$	0,60	3,34	nein
1-komp. Dichtungsschlämme	4	$1,66\cdot10^{-11}$	2,82	1,42	nein
Mod. Bitumendickbeschichtung	5	<nwg< td=""><td>_</td><td>_</td><td>ja</td></nwg<>	_	_	ja
Bitumendickbeschicht., 2-komp.	5	$2,30\cdot10^{-9}$	33,09	$0,\!15$	nein
Kunstoffmod. Bitumendickbesch.	4	$4,90 \cdot 10^{-12}$	1,53	2,61	nein
2-komp. Bitumendickbeschicht.	5	$1,23\cdot10^{-12}$	0,77	6,49	ja
2-komp. Bitumendickbeschicht.	5	$1,25\cdot10^{-12}$	0,77	6,49	ja
Glasschaumplatten, verklebt	60	<nwg< td=""><td>_</td><td>_</td><td>ja</td></nwg<>	_	_	ja
Glasschaumpl., stoßfugenverkl.	60	$9,26\cdot10^{-9}$	66,44	0,90	nein
Glasschaumpl., Fugenverkl., Bit.	70	<nwg< td=""><td>_</td><td>_</td><td>ja</td></nwg<>	_	_	ja
Faserzementplatten	21,5	$4,57 \cdot 10^{-9}$	46,68	0,46	nein
Faserzementpl. Dispersionsanstr.	21	$1,20\cdot10^{-9}$	23,90	0,88	nein
Faserzementpl., glasfaserbesch.	20	$3,86 \cdot 10^{-11}$	4,29	4,66	ja
Abdichtband	1,8	$9,34 \cdot 10^{-11}$	6,68	$0,\!27$	nein
Butyl-Klebeband	30	$1,66 \cdot 10^{-10}$	8,92	3,3	ja
PVC-Rohr	2	<NWG	_	_	ja
Polypropylen-Rohr	2	<NWG	_	_	ja
Bleifolie	0,01	<nwg< td=""><td>_</td><td>_</td><td>ja</td></nwg<>	_	_	ja

Tabelle 9.5: Gemessene Diffusionskoeffizienten und -längen verschiedener Bau- und Isolierungsmaterialien. NWG: Nachweisgrenze

Art	226 Ra	$^{232}\mathrm{Th}$	Dicke	Φ_{Rn}	Φ_{Tn}
	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(cm)	(mBq/m^2s)	(mBq/m^2s)
Hüttensand	113	45	2	<nwg< td=""><td><nwg< td=""></nwg<></td></nwg<>	<nwg< td=""></nwg<>
Hüttensand	121	32	2	<NWG	<NWG
Zinkwälzschlacke			1,2	<NWG	<NWG
Gips, Amphilochia			0,5	0,010	6,61
Phosphorgips	55	241	0,3	0,527	302,48
Phosphorgips	60	252	0,3	0,358	253
Phosphorgips	30	51	0,3	0,289	124
Leichtbetonstein			30	0,284	
Natursteinplatte (China)			2	0,20	
Porenbeton	79	61	4,5	0,029	
Porenbeton	64	46	4,5	0,005	
Klärschlamm			1,5	0,233	44,1
Ölschiefer mit Scoria			20	0,591	
Keramiksteine			7,5	0,005	
Keramiksteine			12,5	0,013	
-50% Flugasche, $50%$ Ton			10	0,016	
- 60% Flugasche, 40% Ton			10	0,011	
- 50% Flugasche, 50% Ton	107	137	2	0,019	
- 65% Flugasche, 35% Ton	116	143	2	0,003	
- 70% Flugasche, 30% Ton	132	153	2	0,004	
- 65% Flugasche, 35% Ton	116	143	10	<nwg< td=""><td></td></nwg<>	
Französischer Granit			3	0,14	31,70
Französischer Granit			3	0,36	22,34
Französischer Granit			3	0,30	42,85
Französischer Granit			3	0,12	32,96
Italienischer Granit			3	0,050	
Uransand	13380		0,1	2,14	
Ytong			12,5	0,08	14,88
zweikomp. PCC BE0-4			4	0,06	12,42
zweikomp. PCC BE0-8				<nwg< td=""><td><nwg< td=""></nwg<></td></nwg<>	<nwg< td=""></nwg<>
Progips			1,2	0,026	
Progips			,	0,024	
CEM I 0,4	3	4	5	0,07	
CEM I 0,5	3	4	5	$0,\!12$	
CEM I 0,6	3	4	5	0,17	
CEM II 0,4	4	5	5	0,13	
CEM II 0,5	4	4	5	0,21	
CEM II 0,6	3	4	5	0,27	
CEM III 0,4	3	4	5	0,18	
CEM III 0,5	3	4	5	0,33	
CEM III 0,6	4	5	5	0,56	

Tabelle 9.6: Radium-, Thoriumkonzentration und Exhalationsraten ausgewählter Baumaterialien. NWG: Nachweisgrenze

9.3 Makro zur Auswertung von Kernspurdetektoren

```
Var
  i,imax,dummy:integer;
  name, nstr:string;
Macro 'Kernspur [k]';
Begin
GetPicSize(dummy,dummy);
  if dummy=0 then begin
    PutMessage('Before running this macro, open
             the first image("0001") in the series.');
    Open('');
  end;
ResetCounter;
SetOptions('Mean');
SetPrecision(2,9);
DisposeAll;
imax := GetNumber('Wieviele Bilder sind es?',20,0);
for i:= 1 to imax do begin
  nstr := numtostring(i);
   while length(nstr) < 4 do begin
        nstr := concat('0',nstr);
   end;
   name := concat('img',nstr,'.tif');
   open(name);
   SetThreshold(75);
   MakeBinary;
   Erode;
   Measure;
   Dispose;
end;
SetOptions('Mean');
SetPrecision(2,9);
ShowResults;
End;
```

9.4 Programmfragment zur Emanation

```
#include<math.h>
#include<stdio.h>
#include<stddef.h>
#include<stdlib.h>
#include<iostream.h>
#define PI 3.141592654
/* Initialisierungswert fuer Zufallszahlengenerator */
long rdum=-5345327; \\ Bei jeder Simulation zu aendern
void nrerror(char error_text[])
/*Numerical Recipes (NR) standard error handler */
char ***f3tensor(int nrl, int nrh, int ncl,
                 int nch, int ndl, int ndh)
/* allocate a float 3tensor with range
   t[nrl..nrh][ncl..nch][ndl..ndh], (NR) */
void free_f3tensor(char ***t, int nrl, int nrh,
              int ncl, int nch,int ndl, int ndh)
/* free a float f3tensor allocated by f3tensor(), (NR) */
float ran1(long *idum)
/* Random nummer generator of Park and Miller
   with Bays-Durham shuffle and added safeguards.
   Returns a uniform random derivate between 0.0
   and 1.0 (excl. endpoint values). Call with idum
   a negative integer to initialize. (NR) */
void initfeld(char ***f, long int fg, int radius)
/* Fuellt den Raum, d.h. den 3d-Array f, mir Gestein
   (ohne Radium) = 3, Gestein mir Radium = 2,
   Wasser = 1 oder Luft = 0 */
void findestartpunkt(char ***f, int fg, int *i,
                     int *j, int *k)
/* Finde in dem Raum ein Feld mit radiumhaltigem
   Gestein */
{
    int x,y,z;
     do {
    x = int(ran1(\&rdum)*fg)+1;
```

```
y = int(ran1(\&rdum)*fg)+1;
        z = int(ran1(\&rdum)*fg)+1;
        }while(f[x][y][z]!=2);
    *i =x;
    *j =y;
    *k =z;
}
void findealphabeta(int fg, float *p, float *q)
/* Finde eine Zerfallsrichtung. */
    float a,b;
    float x,y,z;
    x = ran1(\&rdum)*2-1;
    y = ran1(\&rdum)*2-1;
    z = ran1(\&rdum)*2-1;
    if (x>=0) {
    if (y>=0){
            a = atan(y/x);
        }else{
        a = 2*PI - atan(-y/x);
        }
    }else{
    if (y>=0){
            a = PI - atan(y/-x);
        }else{
        a = PI + atan(-y/-x);
        }
    }
    if (z>=0){
    b = atan(sqrt(x*x+y*y)/z);
    else{
    b = PI - atan(sqrt(x*x+y*y)/-z);
    *p =a;
    *q =b;
}
int main()
{
    int feldgr = 350;
```

```
char ***feld;
float e,emax,de0,de1,de2,de3,alpha,beta;
long int zerf,i,juhu;
int x,y,z;
float xf,yf,zf;
emax=175; // Anfangsenergie = Maximale Reichweite
de0=0.0006; // Energieverlust in Luft
de1=0.8; // in Wasser
de2=1;
          // in radiumhaltiges Gestein
          // in Gestein ohne Radium
de3=1;
        // Zaehler der emanierten Atome
juhu=0;
zerf=100000; // Anzahl der Zerfaelle
feld=f3tensor(1,feldgr,1,feldgr,1,feldgr);
initfeld(feld,feldgr,feldgr/2);
juhu = 0;
for (i=1;i<=zerf;i++){</pre>
findestartpunkt(feld,feldgr,&x,&y,&z);
findealphabeta(feldgr,&alpha,&beta);
xf=float(x);
yf=float(y);
zf=float(z);
/* In diesem Beispiel nur ein festes
 Verhaeltniss zwischen Anfangsenergie
 und Raumgroesse */
e=emax;
/* Bewege das Radonatom in die Richtung;
  Periodische Erweiterung des simulierten Raumes */
do {
   xf = xf+cos(alpha)*sin(beta);
   x = int(xf);
   if (x > feldgr) {
   xf = float(1);
   x = int(xf);
   }
   if (x < 1) {
   xf = float(feldgr);
   x = int(xf);
```

```
yf = yf+sin(alpha)*sin(beta);
        y = int(yf);
        if (y > feldgr) {
        yf = float(1);
        y = int(yf);
        if (y < 1) {
        yf = float(feldgr);
        y = int(yf);
        }
        zf = zf+cos(beta);
        z = int(zf);
        if (z > feldgr) {
        zf = float(1);
        z = int(zf);
        if (z < 1) {
        zf = float(feldgr);
        z = int(zf);
        }
        /* Energieverlust, je nach Feld */
        switch(feld[x][y][z])
            {
             case 0: e -= de0;break;
             case 1: e -= de1;break;
             case 2: e -= de2;break;
             case 3: e -= de3;
        }while(e>0);
    /* Radon emaniert, wenn es nicht im Gestein endet */
    if (int(feld[x][y][z])<2) ++juhu;</pre>
    }
    /* Ausgabe des Ergebnisses */
    cout << float(juhu)/float(zerf) << endl;</pre>
    free_f3tensor(feld,1,feldgr,1,feldgr,1,feldgr);
    return 0;
}
```

9.5 Programmfragment zur Perkolation

```
#include<math.h>
#include<stdio.h>
#include<stddef.h>
#include<stdlib.h>
#define LA 2.0797e-6 \\Zerfallskonstante
#define PI 3.141592654
/* Initialisierungswert fuer Zufallszahlengenerator */
long rdum=-134532;
void nerror(char error_text[])
/*Numerical Recipes (NR) standard error handler */
float *vector(long nl, long nh)
/* allocate a float vector with subscript range v[nl..nh], (NR) */
void free_vector(float *v, long nl, long nh)
/* free a float vector allocated with vector(), (NR) */
int *ivector(long nl, long nh)
/* allocate a int vector with subscript range v[nl..nh], (NR) */
void free_ivector(int *v, long nl, long nh)
/* free a int vector allocated with ivector(), (NR) */
float **matrix(long nrl, long nrh, long ncl, long nch)
/* allocate a float matrix with
   subscript range m[nrl..nrh][ncl..nch], (NR) */
void free_matrix(float **m, long nrl, long nrh,
                 long ncl, long nch)
/* free a float matrix allocated with matrix(), (NR) */
void bandec(float **a, int n, int m1, int m2, float **al,
            int indx[])
/* Given an nxn band diagonal Marix A with m1 subdiagonal
   rows and m2 superdiagonal rows, stored in 45\ \mathrm{degree}
   packed array a[1..n][1..m1+m2+1]. LU-decomposition.
   U is stored in a, L in al[1..n][1..m1]. indx[1..n]
   is an output-vector, records the row-permutations. (NR) */
void banbks(float **a, int n, int m1, int m2, float **al,
        int indx[], float b[])
/* Given the array a, al, and indx as returned from bandec,
   and given a right-hand vector b[1..n], solves the system
```

```
of linear equations. The solution overwrites b. (NR) */
float ran1(long *idum)
/* Random nummer generator of Park and Miller with
   Bays-Durham shuffle and added safeguards. Returns
   a uniform random derivate between 0.0 and 1.0
   (excl. endpoint values). Call with idum a negative
   integer to initialize, (NR) */
void buildr(float **r,float p,int m,int n)
/* Porenradienverteilung incl. Percolation, d.h.
   (1-p)ter Teil der Poren sind zu (r=0); Da nur Flaeche
   der Pore eine Rolle spielt, ist nur das Quadrat von r
   interessant; nur Poren nach links und nach oben werden
   berechnet, und Symmetrie ausgenutzt.
   Nummerierung gegen Uhrzeigersinn */
 {
    int i,j;
    for (i=1;i<=m;i++) {
    j=i-n;
                   /* nach links, wenn es geht */
    if (j>0) {
        r[i][2] = 1e-5 * 1e-5; /* Porenradius */
        if (ran1(\&rdum) >= p) r[i][2]=0.0; /* Perkolation */
        r[j][4] = r[i][2]; /* Symmetrie */
    j=i-1; /*nach oben */
    if (i%n==1) j=i+n-1; /* periodische Randbedingungen */
    r[i][1] = 1e-5 * 1e-5; /* Porenradius */
    if (ran1(\&rdum) >= p) r[i][1]=0.0; /* Perkolation */
    r[j][3] = r[i][1]; /* Symmetrie */
}
void buildd(float **d,float **r,int m,int n, float x)
/* Definition der Diffusionskonstanten innerhalb
   der einzelnen Poren; d[i][j] Diffusionskonstante zwischen
   Pore i in Richtung j, r[i][j]=Radius, n= Anzahl der Poren;
   zur weiteren Berechnungen ist nur Quadratwurzel
   der Diff-konstanten notwaendig; Richtungen analog r */
{
    int i,j;
    for (i=1;i<=m;i++) {
    if ((j=i-n) > 0) { /* nach links, wenn es geht */
```

```
d[i][2] = x; /* konstanter Diff-Koeffizient */
        d[j][4] = d[i][2]; /* Symmetrie */
    }
    j=i-1; /* nach oben */
    if (i%n==1) j=i+n-1; /* periodische Randbedingungen */
    d[i][1] = x; /* konstanter Diff-Koeffizient */
    d[j][3] = d[i][1]; /* Symmetrie */
    }
}
void buildq(float **q,float **r,int m,int n)
/* Definition der Quelltermen innerhalb der
   einzelnen Poren; q[i][j] Emanationsrate zwischen
   Pore i in Richtung j, r[i][j] = Radius, m = Anzahl der Poren;
   Definition der Richtungen analog r */
{
    int i,j;
    for (i=1;i<=m;i++) {
    if ((j=i-n) > 0) {
                           /* nach links, wenn es geht */
        q[i][2] = 100; /* hier ein konstanter Quellterm */
        q[j][4] = q[i][2]; /* Symmetrie */
    j=i-1; /* nach oben */
    if (i%n==1) j=i+n-1; /* periodische Randbedingungen */
    q[i][1] = 100; /* hier ein konstanter Quellterm */
    q[j][3] = q[i][1]; /* Symmetrie */
}
void buildab(float **a,float b[],float **d,float **r,float **q,
             float c0,float c1,float 1,int n,int m)
/* Aufbau der Matrix a und des Vektors b zur Loesung
   des Gleichungssystems, incl. Randwerte. */
{
    int i,j;
    /* Initialisierung, alle Elemente = 0 */
    for (i=1;i<=m;i++) {
    for (j=1;j\leq2*n+1;j++) a[i][j]=0.0;
    b[i]=0.0;
    /* In n+1-ter Spalte (ehem. Diagonalelemente):
```

```
erste und letzte n Elemente von a = 1,
       in b die Randbedingungen */
    for (i=1;i<=n;i++) {
    a[i][n+1]=1.0;
    a[m-i+1][n+1]=1.0;
    b[i]=c0;
    b[m-i+1]=c1;
    }
    /* Abhaengigkeit der Konzentrationen innerer Knoten*/
    /* Beachte: d = Wurzel der Diff-Konstanten,
                r = Quadrate der Radien */
    for (i=n+1;i<=m-n;i++) {
    j=1; /* nach links */
    a[i][n+1] += d[i][2]*r[i][2]/tanh(sqrt(LA)/d[i][2]*l);
    a[i][j] = -d[i][2]*r[i][2]/sinh(sqrt(LA)/d[i][2]*1);
    b[i] -= q[i][2]*d[i][2]*r[i][2]/LA*
            (1-\exp(sqrt(LA)/d[i][2]*1))/
            (1+exp(sqrt(LA)/d[i][2]*1));
    j=2*n+1; /* nach rechts */
    a[i][n+1] += d[i][4]*r[i][4]/tanh(sqrt(LA)/d[i][4]*l);
    a[i][j] = -d[i][4]*r[i][4]/sinh(sqrt(LA)/d[i][4]*1);
    b[i] -= q[i][4]*d[i][4]*r[i][4]/LA*
            (1-\exp(sqrt(LA)/d[i][4]*1))/
            (1+exp(sqrt(LA)/d[i][4]*1));
    j=n; /* nach oben */
    if (i%n==1) j=2*n; /* periodischen Randbedingungen */
    a[i][n+1] += d[i][1]*r[i][1]/tanh(sqrt(LA)/d[i][1]*l);
    a[i][j] = -d[i][1]*r[i][1]/sinh(sqrt(LA)/d[i][1]*l);
    b[i] -= q[i][1]*d[i][1]*r[i][1]/LA*
            (1-\exp(\operatorname{sqrt}(LA)/d[i][1]*1))/
            (1+exp(sqrt(LA)/d[i][1]*l));
    j=n+2; /* nach unten */
    if (i%n==0) j=2; /* periodischen Randbedingungen */
    a[i][n+1] += d[i][3]*r[i][3]/tanh(sqrt(LA)/d[i][3]*1);
    a[i][j] = -d[i][3]*r[i][3]/sinh(sqrt(LA)/d[i][3]*l);
    b[i] -= q[i][3]*d[i][3]*r[i][3]/LA*
            (1-\exp(\operatorname{sqrt}(LA)/d[i][3]*1))/
            (1+\exp(sqrt(LA)/d[i][3]*1));
    /*keine offenen Poren -> konst. Konz. */
    if (a[i][n+1] == 0.0) a[i][n+1]=1;
    }
}
float exhalation(float b[], float **d, float **r, float **q,
                 float cl, float l, int n, int m)
/* Bestimmung der Exhalationsrate aus der Summe der Fluessen
```

```
in Richtung der aeusseren Knoten */
{
    int i;
    float betal,s;
    s=0.0;
    for (i=m-2*n+1;i<=m-n;i++) {
    betal=sqrt(LA)/d[i][4]*1;
    s += PI*sqrt(LA)*r[i][4]*d[i][4]*
         (b[i]/tanh(betal)-cl/sinh(betal)+
         q[i][4]*(1-exp(betal))/LA/(1+exp(betal)));
    }
    return(s);
}
void printmatrix(float **a, int m, int n)
/* gibt die Matrix a aus */
{
    int i,j;
    for (i=1;i<=m;i++) {
    for (j=1; j \le n; j++) {
        fprintf(stdout,"%e",a[i][j]);
        fprintf(stdout," ");
    fprintf(stdout,"\n");
    }
}
void zeichnen(float b[], float **d, float **r, float **q,
              float 1, int n, int m)
/* Erzeugt ein EPS-File, welches das Gitter anzeigt.
   Strichdicke und -farbe kodieren den Fluss durch die Pore */
{
    int *grau1,*grau2,x,y,x1,y1;
    float jmin, jmax, jtemp;
    float **j, betal, skal;
    FILE *datei;
    j=matrix(1,m,1,2);
    grau1=ivector(1,m);
    grau2=ivector(1,m);
```

```
/* Berechnung aller Fluesse */
for (x=1;x\leq m-n;x++) {
    y=1; /*nach links */
    betal=sqrt(LA)/d[x][4]*1;
    j[x][y]=PI*sqrt(LA)*r[x][4]*d[x][4]*
            (b[x]/tanh(betal)-b[x+n]/sinh(betal)+
            q[x][4]*(1-exp(betal))/LA/(1+exp(betal)));
    y=2; /* nach oben */
    j[x][y]=PI*sqrt(LA)*r[x][1]*d[x][1]*
            (b[x]/tanh(betal) -b[x-1]/sinh(betal) +
            q[x][1]*(1-exp(betal))/LA/(1+exp(betal)));
}
/* finden des maximalen und minimalen Fluss =! 0 */
jtemp=0.0; jmin=1e20; jmax=0.0;
for (x=1;x\leq m-n;x++) {
    if (fabs(j[x][1])>jmax) jmax=j[x][1];
    if (fabs(j[x][2])>jmax) jmax=j[x][2];
    if (fabs(j[x][1])<jmin) jmin=j[x][1];</pre>
    if (fabs(j[x][2])<jmin) jmin=j[x][2];</pre>
}
/* Berechnung der Skalierung */
skal = 255/(jmax-jmin);
for (x=1;x<=m-n;x++) {
    grau1[x]=(int ) ceil(skal*fabs(j[x][1])-jmin);
    grau2[x]=(int ) ceil(skal*fabs(j[x][2])-jmin);
}
datei = fopen("gitter.eps","w");
fprintf(datei,"%!PS-Adobe-3.0 EPSF-3.0\n");
fprintf(datei,"%%");
fprintf(datei,"%%BoundingBox: 0 0 2000 2000\n");
fprintf(datei,"300 300 moveto\n");
fprintf(datei, "3 setlinewidth\n");
for (x=1;x<=m-n;x++) {
    x1= (int) x%n*10;
    y1=(int) ceil(x/n)*10;
    fprintf(datei, "%i", x1); fprintf(datei, " ");
    fprintf(datei,"%i",y1);
    fprintf(datei," moveto\n");
    fprintf(datei, "%i", grau1[x]);
    fprintf(datei," setgray\n");
```

```
fprintf(datei,"0 10 rlineto\n");
        fprintf(datei, "%i", x1); fprintf(datei, " ");
        fprintf(datei, "%i", y1);
        fprintf(datei, " moveto\n");
        fprintf(datei, "%i", grau2[x]);
        fprintf(datei, setgray\n");
        fprintf(datei,"10 0 rlineto\n");
    }
    fprintf(datei, "stroke");
    fclose(datei);
}
int main()
    float **a, **al, **d, **r, **q;
    float *b,phi,x;
    int i,j,*indx;
    int n=150,m; /* n:Systemgroesse */
    int itermax=1; /* Anzahl der einzelnen Rechnungen */
    float p=0.8; /* Percolationskonst. */
    float c0=0.0, c1=0.0; /* Randbedingungen */
    float 1=0.2e-3; /* Laenge einer Pore */
    m=n*n; /* Matrixgroesse fuer Gleichungssystem */
    /* Matrix der Diffusionskonstanten der Poren */
    d=matrix(1,m,1,4);
    /* Matrix der Radien der einzelnen Poren */
    r=matrix(1,m,1,4);
    /* Matrix des Quellterms */
    q=matrix(1,m,1,4);
    /* Matrix des linearen Gleichungssystems */
    a=matrix(1,m,1,2*n+1);
    /* L-Matrix nach LU-Zerrlegung */
    al=matrix(1,m,1,n);
    /* Randbedingungen und Loesungsvektor */
    b=vector(1,m);
    /* Indexvektor fuer LU-Zerrlegung */
    indx=ivector(1,m);
    /* In diesem Falle Variation der Diffusionskontante */
    for (int p1 = 0; p1 <= 120; p1 ++) {
       x = \exp(-\log(10.0)*float(p1)/10);
       fprintf(stdout, "%e", x);
```

```
fprintf(stdout,",");
        for (i=1;i<=itermax;i++) {</pre>
           /* Aufbau der Radius-Matrix */
           buildr(r,p,m,n);
           /* Aufbau der Diffkonst-Matrix */
           buildd(d,r,m,n,x);
           /* Aufbaus der Quell-Matrix */
           buildq(q,r,m,n);
           /* Aufbau des Gleichungssystems */
           buildab(a,b,d,r,q,c0,c1,1,n,m);
           /* printmatrix(a,m,2*n+1); */
           /* LU-Zerrlegung */
           bandec(a,m,n,n,al,indx);
           /* Loesung des Gleichungssystems */
           banbks(a,m,n,n,al,indx,b);
            /* Exhalation */
           phi = exhalation(b,d,r,q,cl,l,n,m);
           fprintf(stdout,"%e",phi);
           fprintf(stdout,",");
        fprintf(stdout,"\n");
    /*zeichnen(b,d,r,q,l,n,m);*/
    }
    free_matrix(d,1,m,1,4); /* Unnoetige Matrizen */
    free_matrix(r,1,m,1,4); /* werden geloescht. */
    free_matrix(q,1,m,1,4); /* Speicher wieder frei */
}
```

Literaturverzeichnis

- [1] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, "Radon-Handbuch Deutschland", September 2001.
- [2] G. Keller, H. Muth: "Natural Radiation Exposure" in E. Scherer, Ch. Streffer, K.-R. Trott (Hrsg.): "Medical Radiology, Radiation Exposure and Occupational Risks", Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1990.
- [3] J. Kemski, R. Klingel, A. Siehl: "Die terrestrische Strahlung durch natürliche radioaktive Elemente in Gesteinen und Böden", in A. Siehl (Hrsg.): "Umweltradioaktivität", Ernst & Sohn, 1996.
- [4] B. Cantone *et al.*: "Air Radioactivity in Catania", Nuovo Cimento **12**, pp. 84-88, 1959.
- [5] K. Aurand, W. Jakobi, H. Muth, A. Schraub: "Weitere Untersuchungen zur biologischen Wirkung des Radons und seiner Folgeprodukte", Strahlentherapie 112, pp. 262-272, 1960.
- [6] W. Jacobi: "Radon Strahlenwirkung und Strahlenschutz", Phys. Bl. 45, pp. 430-434, 1989.
- [7] W.F. Bale, J.W. Shapiro: "Radiation Dosage to Lungs from Radon and its Daughter Products", Proc. 1. Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf, 13, pp. 233-236, United Nations, New York, 1956.
- [8] B. Altshuler *et al.*: "Estimation of Lung Tissue Dose from the Inhalation of Radon and Daughters", Health Physics **10**, pp. 1137-1161, 1964.
- [9] A.K.K.M. Haque, A.I.L. Collison: "Radiation Dose to the Respiratory System Due to Radon and Its Daughter Products", Health Physics **23**, pp. 431-443, 1967.
- [10] W. Jacobi: "Relations Between the Inhaled Potential Alpha-energy of ²²²Rn- and ²²⁰Rn-daughters and the Absorbed Alpha-energy in the Bronchial and Pulmonary Region.", Health Physics **23**, pp. 3-11, 1972.
- [11] ICRP Comitte 2: "Limits for Intakes of Radionuclides by Workers", ICRP Publication **30** (1), pp. 23-27, Pergamon Press Oxford, 1979.

- [12] W. Jacobi, K. Eisfeld: "Dose to tissues and effective dose equivalent by inhalation of radon-222, radon-220 and their short lived daughters", GSF-Report, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, S-626, München-Neuenberg, 1980.
- [13] UNSCEAR: "Ionizing radiation; sources and biological effects", UNSCEAR report 1982, New York, United Nations Publication, pp. 141-210, 1982.
- [14] B.L. Cohen, L. Bernard: "Relationship Between Exposure to Radon and Various Types of Cancer", Health Physics **65**, pp. 529-537, 1993.
- [15] SSK: "Epidemiologische Untersuchungen zum Lungenkrebsrisiko nach Exposition gegenüber Radon", 169. Sitzung der Strahlenschutzkommission, 2000, http://www.ssk.de/2000/ssk0007s.pdf.
- [16] G.M. Kendell, T.J. Smith: "Doses to organs and tissues from radon and its decay products", J. Radiol. Prot. **22**, pp. 389-406, 2002.
- [17] G.M. Kendell: "Is lung cancer the only risk from radon?", 16. Statusge-spräch "Forschung zum Problemkreis Radon", Vortragsmanuskripte, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn 2004.
- [18] Römpp Online, Georg Thieme Verlag KG, 2004, http://www.roempp.com.
- [19] J. Kemski, R. Klingel, A. Siehl R. Stegemann: "Die Deutschlandkarte zum Radon im Boden", 16. Statusgespräch "Forschung zum Problemkreis Radon", Vortragsmanuskripte, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn 2004.
- [20] J. Wiegand: "Radon in urbanen Gebieten", in A. Siehl (Hrsg.): "Umweltradioaktivität", Ernst & Sohn, 1996.
- [21] J. Wiegand: "Radon in urbanen Gebieten", 16. Statusgespräch "Forschung zum Problemkreis Radon", Vortragsmanuskripte, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn 2004.
- [22] BfS Informationsblatt 4/96, Radon in der bodennahen Atomsphäre.
- [23] L. Kreienbrock, H.E. Wichmann, G. Keller, et al.: "The German Radon Project".
- [24] G. Keller, B. Hoffmann, T. Feigenspan, "Radon Permeability and Radon Exhalation of Building Materials" The Science of the Total Environment **272**, pp. 85-89 (2001).
- [25] B. Hoffmann, G. Keller: "Untersuchungen der Durchlässigkeit genormter Baustoffe und Bauwerksabdichtungen gegen Radon aus dem Baugrund", Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben StSch 2415 des BfS, 2001.
- [26] M. Jiránek, J. Hůlka: "Applicability of various Insulating Materials for Radon Barriers", Proceedings of Radon in the Living Environment, 19-23 April 1999, Athens, Greece, pp. 439-448, 1999.

- [27] W.Z. Daoud, K.J. Renken: "Laboratory Assessment of Flexible Thin-film Membranes as a Passive Barrier to Radon Gas Diffusion", Proceedings of Radon in the Living Environment, 19-23 April 1999, Athens, Greece, pp. 829-844, 1999.
- [28] Bundesamt für Gesundheit: "Radon: Technische Dokumentation", Bundesamt für Gesundheit, Abteilung Strahlenschutz, Fach- und Informationsstelle Radon, Bern, 2000.
- [29] C.R.Scivyer: "Radon Protection for New Buildings: a Practical Solution from the UK", Proceedings of Radon in the Living Environment, 19-23 April 1999, Athens, Greece, pp. 15-22, 1999.
- [30] DIN 18195 Bauwerksabdichtungen, Teil 1-10, 1983-2000.
- [31] Deutsche Bauchemie e.V. et al.: "Richtlinie für die Planung und Ausführung von Abdichtungen erdberührender Bauteile mit flexiblen Dichtungsschlämmen", 1999.
- [32] Deutsche Bauchemie e.V. et al.: "Richtlinie für die Planung und Ausführung von Abdichtungen erdberührtrender Bauteile mit kunststoffmodifizierten Bitumendickbeschichtungen", 1997.
- [33] G. Keller: "Sanierungsstrategien von Altbauten",15. Statusgespräch "Forschung zum Problemkreis Radon", Vortragsmanuskripte, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn 2003.
- [34] Kommission der Europäischen Gemeinschaft: "Empfehlung zum Schutz der Bevölkerung vor Radonexposition innerhalb von Gebäuden", Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L80/26, 1990.
- [35] Bundesgesetzblatt: "Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung StrlSchV)", Bundesgesetzblatt 2001, Teil 1, Nr. 38
- [36] ICRP: "Protection against Radon-222 at Home and at Work", ICRP Publication 65, Pergamon Press Oxford, 1994.
- [37] S.Y.F. Chu, L.P. Ekström, R.B. Firestone, The Lund/LBNL Nuclear Data Search, http://nucleardata.nuclear.lu.se/nucleardata/toi/index.asp, 2003.
- [38] Packard Instrument, TRI-CARB Liquid Scintillation Analyzer, Model 2700TR, 1995.
- [39] Niton Corporation, Picorad Radon Analysis Software 6.05, 1999.
- [40] R.J.A. Kappl: "Aufbau und Betrieb einer Radon-Kalibrierkammer mit regelbarer Radonkonzentration", Dissertation, Universität des Saarlandes, 1995.
- [41] DIN 25706-2 Passive Radonmessungen Teil 2: Aktivkohlemessverfahren, 1994.

- [42] SSK: "Leitfaden zur Messung von Radon, Thoron und ihren Zerfallsprodukten", Veröffentlichung der Strahlenschutzkommission 47, Urban & Fischer, München, 2002.
- [43] DIN 25706-1 Passive Radonmessungen Teil 1: Kernspurmessverfahren, 1994.
- [44] http://rsb.info.nih.gov/nih-image/ (2003).
- [45] EUR 16949 Results of the 1995 European Commission intercomparison of passive radon detectors.
- [46] EUR 18035 Results of the 1997 European Commission intercomparison of passive radon detectors.
- [47] EUR 18835 Results of the 1998 European Commission intercomparison of passive radon detectors.
- [48] EUR 19148 Results of the 1999 European Commission intercomparison of passive radon detectors.
- [49] NRPB W21 Results of th 2001 European Commission intercomparison of passive radon detectors.
- [50] G. Keller, K.-H. Folkerts, H. Muth: "Method for Determination of ²²²Rn (Radon) and ²²⁰Rn (Thoron) Exhalation Rates using Alpha-Spectroscopy", Rad. Prot. Dos. **3** (1/2), pp. 83-89, 1982.
- [51] V.C. Negro, S. Watnick: "FUNGI A Radon Measuring Instrument with Fast response", IEEE Transactions on Nuclear Science **NS-25** (1), pp. 757-761, 1978.
- [52] A. Wicke: "Untersuchungen zur Frage der natürlichen Radioaktivität der Luft in Wohn- und Aufenthaltsräumen - Grundlagen zur Abschätzung der Strahlenexposition durch Inhalation von Radon- und Thoron-Zerfallsprodukten", Inaugurationsdissertation, Universität Gießen, 1979.
- [53] G. Keller, K.-H. Folkerts: "Radon-222 Concentrations and Decay-product Equilibrium in Dwellings and in the Open Air", Health Physics 47 (3), pp. 385-398, 1984.
- [54] Tracerlab GmbH, Aachener Str. 1354, 50859 Köln.
- [55] M. van der Pal et al.: "Experimental Setup for Measuring Diffusive and Advective Transport of Radon through Building Materials", Proceedings of Radon in the Living Environment, 19-23 April 1999, Athens, Greece, pp. 23-36, 1999.
- [56] V. Steiner, H. Kelm, privat communication.
- [57] M. Schütz: "Der Einfluss meterologischer und geogener Parameter auf die Radonmigration im Erdbaden", Dissertation, Universität des Saarlandes, 1993.

- [58] J. Kemski, R. Klingel, R. Stegemann: "Transferfaktoren Bodenluft Raumluft", 14. Statusgespräch "Forschung zum Problemkreis Radon", Vortragsmanuskripte, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn 2001.
- [59] G. Keller, B. Hoffmann, G. Schütz: "Messung des Radons und seiner Folgeprodukte in Wohnräumen", Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben St.Sch. 4085.
- [60] Landesamt für Kataster-, Vermessungs- und Kartenwesen: "TK 25 Saarland", Ausgabe 2001.
- [61] Geologisches Landesamt Rheinland-Pfalz: "Geologische Karte von Rheinland-Pfalz 1:25000, Blatt 6711 Pirmasens-Nord", 1974.
- [62] DIN 16726 Kunststoff-Dachbahnen; Kunststoff-Dichtungsbahnen; Prüfungen, 1986.
- [63] E.W. Thiele: "Relation between Catalytic Activity and Size of Particle", Ind. Eng. Chem. 31 (7), pp. 916-920, 1939.
- [64] K.A. Landman: "Diffusion of Radon Through Cracks in a Concrete Slab", Health Physics **43**(1), pp. 65-71, 1982.
- [65] R. Collé et al.: "Radon transport through and exhalation from building materials: a review and assessment", National Bureau of Standards, NBS TN 1139, Departement of Commerce, Washington D.C. 202426, 1981.
- [66] K.P. Strong, D. Levins: "Effect of Moisture Content on Radon Emanation from Uranium Ore and Tailings", Health Physics **42** (1), pp. 27-32, 1982.
- [67] K.-H. Folkerts: "Theoretische und experimentelle Untersuchungen über Diffusion und Exhalation der natürlich radioaktiven Edelgase ²²²Rn (Radon) und ²²⁰Rn (Thoron) aus Baustoffen und deren praktische Bedeutung für die Strahlenexposition in Wohnräumen", Dissertation, Universität des Saarlandes (1983).
- [68] M.P. Hollewand, L.F. Gladden: "Modelling of Diffusion and Reaction in Porous Catalysts using a Random Three-Dimensional Network Model", Chem. Eng. Sci. 47(7), pp. 1761-1770, 1989.
- [69] A. Wheeler: "Reaktion Rates and Selectivity in Catalysts Pores", Adv. in Catalysis (W.G. Frankenburg, V.I. Komarevsky, E.K. Rideal (Eds.)), Vol. 3, New York, Academic Press, 1950, p. 250.
- [70] N. Epstein: "On Tortuosity and the Tortuosity Factor in Flow and Diffusion Through Porous Media", Chem. Eng. Sci. 44, pp. 777-779, 1989.
- [71] P.N. Sharratt, R. Mann: "Some Observations on the Variation of Tortuosity with the Thile Modulud and Pore Size Distribution", Chem. Eng. Sci. **42** (7), pp. 1565-1576, 1987.

- [72] L. Zhang, N.A. Seaton: "The Application of Continuum Equations to Diffusion and reaction in Pore Networks", Chem. Eng. Sci. 49 (1), pp. 41-50, 1994.
- [73] C. Samuelsson, H. Pettersson: "Exhalation Of ²²²Rn from Porous Materials", Rad. Prot. Dos. 7 (1-4), pp. 95-100, 1984.
- [74] A.B. Tanner: "radon migration in the ground: a review", in J.A.S. Adams, W.M. Lowder (Eds.): "The Natural Radiation Environment", pp. 161-190, University of Chicago Press, 1964.
- [75] A.B. Tanner: "Radon migration in the ground: A supplementary review", Proceedings of the Natural Radiation Environment III, Gessel & Lowde (Eds.), Conf. 780422, US Dep. of Commerce, Natural Technique Information Service, Springvield, 1980.
- [76] F.W. Küster, A. Thiel: "Rechentafeln für die chemische Analytik", 102. Aufl., DeGruyter, Berlin, New York, 1982.
- [77] F. Keil: "Diffusion und chemische Reaktion in der Gas/Feststoff-Katalyse Eine Übersicht, Teil I", Chem. Technik **45** (2), pp. 67-77, 1993.
- [78] F. Keill: "Diffusion und chemische Reaktion in der Gas/Feststoff-Katalyse
 Eine Übersicht, Teil IIa", Chem. Technik 44 (6), pp. 437-447, 1993.
- [79] F. Keill: "Diffusion und chemische Reaktion in der Gas/Feststoff-Katalyse Eine Übersicht, Teil IIb", Chem. Technik **46** (2), pp. 7-15, 1994.
- [80] F.A.L Dullien: "Porous Media Fluid Transport and Pore Structure", Academic Press, New York, 1992.
- [81] R.N. Foster, J.B. Butt: "A Computational Model for the Structure of Porous Materials Employed in Catalysis", AIChEJ 12, pp. 180-185, 1986.
- [82] N. Wakao, J.M. Smith: "Diffusion in Catalyst Pellets", Chem. Eng. Sci. 17 (11), pp. 825-834, 1962.
- [83] D. Stauffer, A. Aharony: "Introduction to Percolation Theory", 2nd Ed., Taylor & Francis, 1992.
- [84] L. Zhang, N.A. Seaton: "Prediction of the Effective Diffusivity in Pore Networks Close to a Percolation Threshold", AIChEJ 38 (11), pp. 1816-1824, 1992.
- [85] B. Mandelbrot: "The Fractal Geometry of Natur", W.H. Freeman and Company, New York, 1977.
- [86] A. Bunde, S. Havlin (Eds.): "Fractals and Disordered Systems", Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1991.
- [87] T.M. Semkow: "Fractal Model of Radon Emanation from Solids", Phys. Rev. Let. 66(23), pp. 3012-3015, 1991.

- [88] F. Stallmach et al.: "Fractal Geometrie of Surface Areas of Sand Grains Probed by Pulsed Field Gradient NMR", Phys. Rev. Lett. 88 (10), 105505, 2002.
- [89] M.F.L. Johnson, W.E. Stewart: "Pores Structure and Gaseous Diffusion in Solid Catalysts", J. Catal. 4, pp. 248-252, 1965.
- [90] T.P. Barton, P.L. Ziemer: "The Effects of Particle Size and Moisture Content on the Emanation of Rn From Coal Ash", Health Physics 50 (5), pp. 581-588, 1986.
- [91] A, Özgümüs, R. Barillon, A. Chambaudet, J.E. Groetz: "Theoretical Study of the Radon Emanation Coefficient for granular Material: Influence of Packing and Water", Proceedings of Radon in the Living Environment, 19-23 April 1999, Athens, Greece, pp. 829-844, 1999.
- [92] A, Özgümüs, R. Barillon, A. Chambaudet, "Radon Emanation coefficient study of a geological sample", Nuovo Cimento C 22, pp. 301-307, 1999.
- [93] Beton DIN-ZTV-ENV, Beton-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1996.
- [94] D.A.W Boussus: "Emanating Power and Specific Surface Area", Rad. Prot. Dos. 7 (1-4), pp. 73-76, 1984.
- [95] L. Morawska, C.R. Phillips: "Dependence of the Radon Emanation Coefficient on Radium Distribution and Internal Structure of the Material", Geochimica et Cosmochimica Acta 57, pp. 1783-1797, 1993.
- [96] T.M. Semkow, P.P. Parekh, C.O. Kunz, C.D. Schwenker: "Radon Emanation from Fractal Surfaces", Proceedings of the 1991 International Symposium on Radon and Radon reduction Technology IX: Radon Occurrence in the Natural Environments, IXP-5, 1991.
- [97] W.H. Press *et al.*: "Numerical Recipes in C, The Art of Scientific Computing", 2nd Ed., Cambridge University Press, 1992.
- [98] K.K. Nielson, V.C. Rogers, G.W. Gee: "Diffusion of Radon through Soils: A Pore Distribution Model", Soil Science Society of America Journal 48(3), pp.482-487, 1984.
- [99] J.N. Andrew, D.F. Wood: "Mechanism of Radon release in Rock Matrices and Entry into Ground Waters", Trans. Inst. Min. Metall., Sec. B81, pp. 198-209, 1972.
- [100] L.R. Greiner: "Radon Emanation from Coals: Effects of Moisture and Particle Size", Health Physics 48 (3), pp. 283-288, 1985.
- [101] J.S. Andrade, Jr., D. A. Street, Y. Shibusa, S. Havlin, H.E. Stanley: "Diffusion and Reaction in Percolating Pore Networks", Phys. Rev. E 55 (1), pp. 772-777, 1997.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Mittlere effektive Jahresdosis in Deutschland durch ionisierende Strahlung im Jahr 2000	7
1.2	Schematische Ausbreitung des Radons	9
1.3	Konvektives Eindringen und Diffusion von Radon durch Bauteile	J
1.0	hindurch	9
1.4	Aufbau einer Feuchte- und Wärmeisolierung	10
1.1	Transactine reachies and warmensonering	10
2.1	Picorad-Aktivkohledetektoren	14
2.2	"Karlsruher" Kernspurdetektoren	15
2.3	Geätzte Folie eines Kernspurdetektors	16
2.4	Kalibrierung der Kernspurdetektoren	17
2.5	ERS-1 und die Messsonde eines selbstgebauten Exhalationsmess-	
	gerätes	18
2.6	Prinzip der Exhalationsmessung	19
2.7	α -Spektrum	19
2.8	Prinzip des Messaufbaus	20
2.9	Schematische Darstellung der Messanordnung zur Bestimmung	
	des Radon-Diffusionskoeffizienten	22
3.1	Diffusionskoeffizienten von Betonplatten in Abhängigkeit des Wasserzementwertes	26
3.2	Exhalationsrate von Betonplatten in Abhängigkeit des Wasser-	
J	zementwertes	27
3.3	Effektive Porosität von Betonplatten in Abhängigkeit des Was-	
	serzementwertes	27
3.4	Aufbau der Modellwand	30
3.5	Stoßfugen einer Poroton- und einer Porotonwand	31
3.6	Schiffweiler	34
3.7	Geologische Karte von Donsieders	34
3.8	Bericht in der Saarbrücker Zeitung	35
3.9	Mittels Picorad gemessene Innenraumkonzentrationen	36
3.10	Mittels Kernspurdetektoren gemessene Innenraumkonzentrationen	
3.11	Bodenluftmessungen an zwei ausgewählten Häusern	37
J.11	2000 manufation and 2001 amogo waithout Hauberti	91
5.1	Messung der Radon- bzw. Thoronexhalation von " $Pumex~0/10$	
	STD"	52

5.2	Messung der Radon- bzw. Thoronexhalation unter Berücksichti-	53
5.3	gung einer Leckrate	55
5.4	Exhalationsmessungen an Phosphorgips aus Jordanien	58
5.5	Emanationskoeffizienten des Phosphorgipes aus Jordanien	59
5.6	Gammaspektroskopische Messung des Emanationskoeffizient von	-0
	Phosphorgips aus Jordanien	59
5.7	Emanationskoeffizienten der Zementplatten in Abhängigkeit des Wasserzementwertes	60
6.1	Skizze einer Modellpore	63
6.2	Kugelförmiges Korn	65
6.3	Sehr kleines kugelförmiges Korn	67
6.4	Emanationswahrscheinlichkeit bei einem kugelförmigen Korn mit	
	homogener Radiumverteilung	68
6.5	Kugelförmige Pore	68
6.6	Kugelförmige Pore mit unterschiedlicher Rückstoßreichweite	70
6.7	Prinzip der Monte-Carlo-Rechnung.	72
6.8	Emanationswahrscheinlichkeit bei planparallelen Platten	74
6.9	Emanationswahrscheinlichkeit bei planparallelen Platten in Ab-	
	hängigkeit der Feuchte	74
6.10	Simuliertes kubisches Gitter.	75
	Emanationswahrscheinlichkeit bei einem kubischen Gitter aus	
	Kugeln konstanten Abstandes in Abhängigkeit des Kugelradius	75
6.12	Emanationswahrscheinlichkeit bei einem kubischen Gitter aus	
	dicht gepackten Kugeln in Abhängigkeit des Kugelradius	76
6.13	Emanationswahrscheinlichkeit bei einem luftgefüllten kubischen	
	Gitter aus dicht gepackten Kugeln in Abhängigkeit des Kugelra-	
	dius	77
6.14	Emanationswahrscheinlichkeit bei einem kubischen Gitter von	
	zylindrischen Röhren konstanten Abstandes in Abhängigkeit des	
	Röhrenradius	78
6.15	Emanationswahrscheinlichkeit in zylindrischen Röhren in Abhängig-	
	keit des Röhrenradius	78
7.1	Realisierungen verschiedener Perkolationsgitter	82
7.2	Realisierungen eines Diffusionsvorganges durch ein Perkolations-	
	gitter	83
7.3	Abhängigkeit der Flussdichte von der angelegten Konzentrati-	~~
7 1	onsdifferenz	85
7.4	Abhängigkeit des Exhalationsrate von der Perkolationskonstante	85
7.5	Abbängigkeit der Flussdichte von dem Verhältnis d/R	86
7.6	Abhängigkeit der Exhalationsrate von dem Quellterm q	87
7.7	Abhängigkeit der Exhalationsrate von der Perkolationskonstante p	87
7.8	Abhängigkeit der Exhalationsrate von der Diffusionslänge	88

Tabellenverzeichnis

Diffusionslängen von CEM I – III	28
Diffusionskonstanten und -längen unterschiedlicher Wände	31
Transferfaktoren der gemessenen Mauerwerke	33
Emanationskoeffizienten in Abhängigkeit der Probenfeuchte	54
Gammaspektrometrisch bestimmte Radionuklidkonzentration im	
Gips	57
Emanationskoeffizienten des Phosphorgipes aus Jordanien in Ab-	
hängigkeit der Probenfeuchte	58
Emanationskoeffizienten der Zementplatten	60
Emanationskoeffizienten weiterer Baustoffproben	61
Auswertung des Fragebogens	96
Besonderheiten der Häuser	97
Gemessene Innenraumkonzentration in Ein- und Zweifamilienhäuser	n
in Schiffweiler	98
Bodenluftkonzentrationen und Transferraten von Ein- und Zwei-	
familienhäusern in Schiffweiler	99
Diffusionskoeffizienten verschiedener Materialien	
ter Materialien	101
	Emanationskoeffizienten in Abhängigkeit der Probenfeuchte

Danksagung

Herrn Prof. Dr. Gert Keller danke ich für die interessante Fragestellung, die zahlreichen wertvollen Diskussionen und die großzügige Unterstützung dieser Arbeit.

Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr. J. Hüttermann und Prof. Dr. Th. Wichert für ihre freundliche Unterstützung und der Hilfe bei der Klärung organisatorischer Fragestellungen.

Für das angenehme und freundschaftliche Arbeitsklima und den vielen Hilfen möchte ich mich bei den Mitarbeitern der Radioaktivitätsmessstelle Gabi Bauch, Ilona Zäh, Barbara Boeffel und Helmut Lehnen bedanken.

Bei Frau Ruth Maria Nickels möchte ich mich für die vielen Diskussionen bedanken, und dafür, dass ich von ihrer langjährigen Erfahrung bei der auswertung von Kernspurdetektoren profitieren konnte.

Und natürlich danke ich meiner Familie, die mich immer unterstützt hat und verhinderte, dass ich nur noch an Radon dachte.