

Radon Exhalation aus Baustoffen - ein Beitrag zur Metrologie im Strahlenschutz

H. von Philipsborn, Universität Regensburg; R. Geipel, Private Schulen Pindl,
Regensburg; G. Just, Forschungsbüro Radon, Großpösna

Summary

Dimensional analysis of customary quantities for radon exhalation rate measurements of building materials and inspection of their tabulated numerical values reveal their doubtful value for indoor radiation protection. The contribution of presently used building materials to indoor radon is negligible by accepted standards. Hence, building materials are sufficiently characterized by their gamma activity concentration index with the proviso of "amount used". The concept of "circa measurements" is introduced and a "circa-method" for radon exhalation rate measurements of building materials is presented, the "Black-Hole-Method", with useful applications in mitigation, school experiments and for testing foils for their radon gas-tightness.

Einleitung

Radon in Wohnräumen verursacht den Hauptbeitrag zur natürlichen Strahlenexposition. Hauptquelle für Radon in Wohnräumen ist geologisch bedingtes Radon in der Bodenluft, wenn diese Bodenluft baulich und klimatisch bedingt Zutritt zu Wohnräumen findet und aus diesen wegen ungenügender Lüftung nicht entfernt wird.

Radon aus Baustoffen ist regional- und zeit-bedingt eine zweite, weniger häufige Quelle für erhöhte Konzentrationen von Radon in Wohnräumen. In Schweden wurden in den 20er bis 70er Jahren Leichtbausteine, sog. „blue concrete“, unter Verwendung von örtlich uran-/radiumhaltigem „Alaun- oder Schwarzschiefer“ (sog. Kolm) hergestellt. Dieser Radon exhalierte Baustoff führt zu Raumkonzentrationen von ein bis mehreren kBq/m^3 und zudem in Wohnräumen nach eigenen Messungen zu Gammaortsdosisleistungen bis zu 500 nSv/h. In Deutschland kann die örtliche Verwendung von Bimsstein, Granit und Sandstein als natürliches Baumaterial erhöhte Radonkonzentrationen in Wohnräumen verursachen.

Die Verwendung von radioaktiven Reststoffen wie Chemiegips, Kohlenasche, Flugstaub und Erzschlacken als Zuschlagstoffe zu Zement, Beton und anderen technischen Baumaterialien führt zur Frage, ob solche Baumaterialien durch Gammastrahlung und/oder Radonexhalation bedenklich erhöhte Strahlenexpositionen in Wohnräumen verursachen.

Während zur Messung der Gammaaktivität und der Gammaortsdosis-Leistung eichfähige Instrumente zur Verfügung stehen, sind schon Instrumente zur Messung der

Radonkonzentration nicht eichfähig. Noch problematischer ist die Messung von Radonexhalationsraten. Sie stellt uns vor interessante Fragen der Metrologie.

Metrologie und Dimensionsanalyse

Die Metrologie, die Wissenschaft vom Messen, ist das Herz der Physik. In der Metrologie gibt es zwei Ausrichtungen. In der einen ist es das erklärte Ziel, immer empfindlicher, genauer und zuverlässiger zu messen, auch mit neueren "einfacheren" Methoden wofür man bereit ist, mehr zu zahlen und an Verständlichkeit zu verlieren. In der anderen Ausrichtung der Metrologie fragt man zuerst, genügt für einen bestimmten Zweck eine "circa"-Messung. Was kann damit an Kosten gespart und an Verfügbarkeit und Verständlichkeit gewonnen werden. "Circa-Messungen" sind dann völlig ausreichend, wenn ihr Ergebnis in "Circa-Berechnungen" eingeht, bei denen das Endergebnis von mehreren "circa-Faktoren" bestimmt wird. Die Berechnung der Strahlenexposition aus Radonkonzentrationen ist eine "circa-Berechnung".

Es werden zwei Thesen begründet: 1. Messungen der Radonexhalation aus Baustoffen liefern, was den Strahlenschutz betrifft, nur "circa-Ergebnisse". 2. Für den Strahlenschutz sind für die Messung der Radonexhalation aus Baustoffen "circa-Methoden" mit "circa-Ergebnissen" ausreichend.

Für die Radonexhalation von Baumaterialien gibt es in der Literatur zwei physikalische Größen mit unterschiedlicher [Dimension].

1. Flächenspezifische Radonexhalationsrate E_s [Aktivität pro Zeit und Fläche].
 2. Massenspezifische Radonexhalationsrate E_m [Aktivität pro Zeit und Masse].
- Als Einheiten werden verwendet Becquerel (Bq, mBq, μ Bq), Stunde, Sekunde, Quadratmeter, Kilogramm.

Die Dimensionsanalyse ergibt die Formel:

$$[E_s] [E_m]^{-1} = [\text{Bq h}^{-1} \text{ m}^{-2}] [\text{Bq h}^{-1} \text{ kg}^{-1}]^{-1} = [\text{kg m}^{-2}] = [\text{m}] [\text{kg m}^{-3}] = [\text{d}] [\text{g}]$$

Das Produkt von $[E_s]$ mit $[E_m]^{-1}$ hat die interessante Dimension [Masse pro Fläche], das ist eine Flächenmasse, wie sie mit den Einheiten $[\text{mg cm}^{-2}]$ bei Detektoren zur Charakterisierung der Absorption des Strahlungseintrittsfensters dient. Die Flächenmasse ist von der Dimension her darstellbar als Produkt einer Länge mit einer Dichte. Die Länge ist die Dicke der Probe an der E_s gemessen wurde, und die Dichte ist die Dichte der Probe an der E_m gemessen wurde.

Diese einfache Dimensionsanalyse zeigt: Man begeht einen metrologischen Kurzschluss, wenn man aus den Messdaten einer einzigen Messanordnung wahlweise E_s oder E_m berechnet oder aus einer der beiden mit Hilfe von d und g die andere. Wird dagegen E_s und E_m in der jeweils richtigen Messanordnung und zudem als Funktion der Geometrie der Probe und der Zeit gemessen, so lassen sich interessante Daten über das „Innenleben“ der Proben ableiten.

E_s und E_m sind somit „technische Größen“ in dem Sinn, dass ihr gemessener Zahlenwert stark abhängig ist von der Geometrie der Messprobe, was bei einer echt „physikalischen Größe“, wie die Dichte, Geschwindigkeit etc nicht der Fall ist.

Da Messungen von Radonexhalationsraten somit metrologisch problematisch sind und zudem recht aufwendig, ist ihr Zweck primär der Strahlenschutz und nicht die Baumaterialphysik. Die für den Strahlenschutz relevante Größe ist aber nicht E_s und schon gar nicht E_m , sondern die „Dosis“ bzw die zur Berechnung der Dosis verwendbare physikalische Größe Radonkonzentration C [Bq m^{-3}] bzw. „gleichgewichts-äquivalente Radonkonzentration“ R in Einheiten [EER] mit dem Gleichgewichtsfaktor $F = R/C$. C und R sind zu messen in der Luft eines Raumes mit Wänden aus dem fraglichen Baumaterial.

Radon - vom Baustoff zur Raumluf

Relevant für die Radonkonzentration C in der Raumluf und damit für die Strahlenexposition ist aber nicht eine im Labor an einer Probe gemessene Exhalationsrate E_s , sondern die aus einer Wand des fraglichen Baumaterials wirksame, und an der Wand zu messende wandspezifische Exhalationsrate E_w . Diese hängt nicht nur vom Baumaterial ab, sondern vor allem auch von der äußeren Oberfläche von Putz, Tapete, Farbe, und dem Temperatur, bzw, Druckgradienten zwischen Innen und Außen der Wand.

Mustonen et al [1] haben unter der Annahme eines „Standard-Raumes“ mit bestimmtem Oberflächen zu Volumen Verhältnis für verschiedene angenommenen Werte von E_w und drei Luftwechselraten von 1,0; 0,5 und 0,1 pro Stunde die zu erwartenden Radonkonzentrationen berechnet. Die Kurven in seiner Abb. 7.3.1 in $\ln C$ vs $\ln E_w$ Darstellung ergeben für eine Luftwechselrate von $0,5 \text{ h}^{-1}$ folgende Bereiche:
für E_w von 2 bis $20 \text{ Bq h}^{-1} \text{ m}^{-2}$ ergibt sich C von 10 bis 60 Bq m^{-3} und
für E_w von 20 bis $100 \text{ Bq h}^{-1} \text{ m}^{-2}$ ergibt sich C von 60 bis 250 Bq m^{-3} .

Aus den großen Unbestimmtheiten, die zwischen E_m und E_s , sowie einer im Labor messbaren Exhalationsrate E_s und einer im Raum wirksamen Exhalationsrate E_w sowie zwischen E_w und C , sowie zwischen C und der im Strahlenschutz relevanten Dosis bestehen ergibt sich für den Strahlenschutz:

1. Messungen von E_m sind irrelevant,
2. Messungen von E_s an Materialien, die Werte unter $10 \text{ Bq h}^{-1} \text{ m}^{-2}$ erwarten lassen, sind irrelevant.
3. Für Messungen von E_s an Materialien, die Werte zwischen 10 und $50 \text{ Bq h}^{-1} \text{ m}^{-2}$ erwarten lassen, ist ein "circa-Ergebnis“ um einen Faktor 2 völlig ausreichend. Scheinbar gesicherte Zahlenwerte, welche im Einzelfall bis auf mehrere Stellen nach dem Komma präsentiert werden, täuschen für den Außenstehenden eine Sicherheit vor, die in Wahrheit nicht besteht.
4. Die genannten Bereiche verschieben sich abhängig von den Richtwerten für die erwünschte Radonkonzentration in Wohnräumen. Richtwerte zeigen starke Unterschiede von Land zu Land. Strahlenschutz ist oft nicht wissenschafts- sondern politikbestimmt.

Die Aussagen 1 bis 3 gelten unter der Annahme, dass Messungen von Radonexhalationsraten E_s für den Strahlenschutz erfolgen und nicht aus akademischen, beschäftigungstherapeutischen oder baumarktwettbewerblichen Gründen.

Von der European Commission wird im Document Radiation Protection 112 [2] "Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Mate-

rials" unter Bezugnahme auf Mustonen et al (1997) zur Bewertung von Baustoffen nicht die Radonexhalation, sondern ein (Gamma) "Aktivitäts-Konzentrations-Index" gewählt. Dieser wird ohne Berücksichtigung von Radon aus dem Dosiskriterium abgeleitet. Mit Ausnahme von hoch-radiumhaltigem Gips sollte der (Gamma-) Index auch die wegen Radon bedenklichen Baustoffe erfassen.

Ein Problem bei Radioaktivitätsrichtwerten für Baustoffe, die auf die Masse [kg] des Baustoffs bezogen sind, ist der fehlende Mengenbezug. Gilt die gleiche Konzentration pro kg für Baustoffe wie Beton, aus denen das ganze Haus gebaut ist, und gleichermaßen für Baustoffe, wie Granit, mit dem ein Fußboden belegt ist, oder für Fliesen oder gar deren Glasur? Ein weiteres Problem: wird primär an Bewohner eines Hauses gedacht, dessen Zement radioaktive Reststoffe als Zuschlagstoff enthält, und wird der Arbeiter vergessen, der mit den Reststoffen bei der Zementherstellung umgeht?

Technische Parameter verschiedener Meßmethoden

In der Literatur sind ganz verschiedenartige Vorrichtungen zur Messung von Radonexhalationsraten beschrieben. Sie sind alle recht aufwendig und es stellt sich die Frage, ist nicht eine ganz grundsätzliche Vereinfachung möglich. Alle Vorrichtungen bestehen aus vier Teilen: der Messprobe, dem Behälter, dem Sammler und dem Detektor. Die Vorrichtungen oder Methoden unterscheiden sich in ihren Teilen und wie diese zueinander verknüpft sind, sowie im Zeitmodus in dem primäre Größen gemessen werden und andere daraus abgeleitet.

Die Probe ist der Baustein mit zu definierender Geometrie. Die Exhalationsrate E_s wird an einer oder mehreren offenen Oberflächen gemessen, während die übrigen versiegelt sind oder sich außerhalb des Behälters befinden. Die Funktion des Behälters ist das exhalierende Radon dem Sammler zuzuführen. Zur "freien" Exhalation von Radon aus der Oberfläche ist ein Konzentrationsgradient zwischen Probe und Behältervolumen bzw. Sammler notwendig. Üblicherweise erhält man den Konzentrationsgradienten, indem das Volumen des Behälter groß ist gegenüber dem "freien" Volumen der Probe und damit die Konzentration im Behälter klein gegenüber der Konzentration in der Probe. Deshalb befindet sich die Probe in einem großvolumigen Behälter, oder eine Halbkugel, ruht auf einer Probenoberfläche.

Die Funktion des Sammlers ist, das exhalierende Radon zu sammeln und zu speichern zur Messung im Detektor. Der Sammler kann die Luft im Behälter sein, aus welchem die radonhaltige Luft durch Diffusion, Gasfluß, oder als Einzelprobe dem Detektor zugeführt wird. Der Sammler kann Aktivkohle sein oder eine elektrostatische Fokussierung auf einen Halbleiter-Detektor.

Als Detektoren dienen Lucas-Zellen, Halbleiter-Alpha-Zähler oder Alpha-Spektrometer, Gamma-Spektrometer, Proportional- und GM-Zähler, Ionisationskammern, Flüssigszintillation und Kernspurdetektoren.

Die "Schwarze-Loch-Methode"

Ein neuartiger Weg, den notwendigen Konzentrationsgradienten zu erhalten ist, das freie, nicht von der Probe eingenommene Volumen des Behälters sehr klein zu ma-

chen, und darin eine starke "Senke" für Radon vorzusehen. Aktivkohle, ist ein guter Adsorber für Radon, und damit eine wirksame Senke. Das ist die Methode des "Schwarzen Loches": Die Probe wird allseitig mit radongasdichter Klebfolie eingeschlossen, auf einer Seite in die Folie eine Öffnung geschnitten, und die Öffnung mit einem "Aktivkohlepflaster", das ist fein gekörnte Aktivkohle auf Klebfolie, verschlossen.

Schon nach wenigen Stunden ist von der Aktivkohle gespeichertes Radon-222 im radioaktiven Gleichgewicht mit Blei-214 und Wismut-214. Diese können als Beta-/Gammastrahler in-situ durch die Klebfolie hindurch mit einem aufgelegten Proportional- oder GM-Detektor gemessen werden, oder genauer das abgezogene Aktivkohlepflaster in dem Messgerät LLM 500 von mab. Bei stark exhalierten Proben kann man schon den Wert nach 12 Stunden zur Berechnung der $Bq\ h^{-1}$ nehmen, bei schwachen Proben, den Wert nach 2 Wochen durch die Halbwertszeit von 92 h dividieren.

Die Schwarze-Loch-Methode wurde von G. Just in Schweden zur in-situ Messung der Radonexhalation aus Wänden bestehender Wohnungen entwickelt [3, 4, 5]. Ein Aktivkohlegewebe als Sammler wurde hinter einer Klarsichthülle an der Wand befestigt, und das radonbeladene Gewebe nach 12 oder mehr Stunden im Messgerät LLM 500 ausgemessen. An Wänden aus den eingangs erwähnten uranhaltigen Leichtbausteinen älterer Herstellung werden leicht 50 und mehr Bq pro Sammler erreicht. Die Wirksamkeit von Schutztapeten und Schutzfarben konnte so auf einfachste Weise vor Ort messbar gemacht werden.

Die Schwarze Loch-Methode wurde in Regensburg zur Beurteilung der Radonexhalation von Granitplatten verschiedener Provenienz weiter entwickelt [6, 7]. Für den im Bau befindlichen Forschungsreaktor München II wurden verschiedene als Bodenplatte für die Experimentierhalle vorgesehene ostbayerische Granitsorten untersucht. Um die auf sehr niedrige Aktivitäten eingestellten Ausgangsschleusen für die Mitarbeiter nicht unnötig ansprechen zu lassen, soll die Radonraumkonzentration sehr niedrig gehalten werden.

Granite aus verschiedenen Steinbrüchen, aber mit ungefähr gleichen Gamma-Aktivitäten zeigen Unterschieden in der Radonexhalation bis zu einem Faktor 6, weshalb für den FRM II schliesslich die Verwendung eines südafrikanischen Gabbros empfohlen wurde. Gut radon-exhalierend sind die alterierten Granite was schon an einer Verfärbung erkennbar ist. Alteriert nennt man Gesteine, die durch physikalische oder chemische Einwirkung verändert wurden. Hierüber wurde auf der internationalen Mineralogen Tagung in Wien September 99 vorgetragen.

Besonders im Erzgebirge [8], aber auch im Fichtelgebirge und in der Oberpfalz sind einige hochdifferenzierte und metasomatisch beeinflusste Granite bei erhöhter Gammaaktivität durch sekundäre Bildungen von mikroskopisch kleinen Uranmineralen gekennzeichnet. Eine Folge ist die verstärkte Freisetzung von Radon aus Klüften und Verwitterungsmaterial im Baugrund und aus Granitoberflächen, wenn solches Material in Gebäuden eingesetzt worden ist.

Die Schwarze-Loch-Methode ist eine praxisnahe "circa-Methode" zur Messung von Radonexhalationsraten. An Granitplatten mit verschiedenen starker Exhalation wurden

Vergleichsmessungen mit zwei etablierten Meßmethoden durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen für die flächenspezifische Exhalationsrate [$\text{Bq h}^{-1} \text{m}^{-2}$] "gute" Übereinstimmung, besser als einen Faktor 2. Dies ist für eine "circa-Methode" völlig ausreichend, vor allem wenn man den geringen apparativen Aufwand und die große Verständlichkeit der neuen Methode zu schätzen weiss.

Mit der beschriebenen Methode können von einer Granitplatte von $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$ in einer Aktivkohleschicht von 5 cm Durchmesser 25 Bq Radonzerfallsprodukte gemessen werden. Dies hat Eingang gefunden in den Philion-Experimentier-Koffer zur Radioaktivität, worüber am 11. Radon Statusgespräch Mai 1998 in München vorgetragen wurde.

Zur "Schwarzen-Loch-Methode" gibt es eine Umkehr: dann dient eingeschlossene Aktivkohle nicht als Senke zum Sammeln von exhalierendem Radon, sondern mit viel Radon beladene Aktivkohle dient als Quelle zur Prüfung der einschliessenden Folie auf ihre Dichtheit für Radongas. Die Folie ist dicht, wenn die Halbwertszeit der Quelle 92 Stunden beträgt.

Mit der Aufnahme auch der natürlichen Radioaktivität, wenn an Arbeitsplätzen, in die Novellierung der Strahlenschutzverordnung, auf Grund der EU- Rahmenrichtlinie 96/26 (Basic Safety Standard) entsteht ein großer Bedarf an einfachen, überall durchführbaren, auch für betroffene Nichtfachleute verständliche Meßmethoden und Messinstrumente. Dies gilt sowohl für den operativen Strahlenschutz wie auch für die Ausbildung und den Schulunterricht in Radioaktivität. Hierzu beizutragen, ist unser Bemühen.

Literatur:

[1] R. Mustonen, M. Pennanen, M. Annanmäki, E. Oksanen, for the European Commission under Contract No 96-ET-003: Enhanced Radioactivity of Building Materials. STUK, Helsinki, December 1997.

[2] European Commission: Radiation Protection 112. Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials. 1999

[3] G. Just, H. von Philipsborn: Radonexhalation aus Bau- und Rohstoffen. Strahlenschutzpraxis 4/96, (1996), 78 - 82.

[4] G. Just, H.von Philipsborn, M. Matolin, D. Molzahn: Sanierung von Häusern in Schweden und Norwegen. Anwendung von Meßverfahren für Radon und Radonfolgeprodukte. 30. Jahrestagung Fachverband Strahlenschutz, Lindau, 28. Sept.- 2. Okt. 1998, 453 - 458.

[5] G. Just, H. von Philipsborn: Application of Field and Laboratory Methods. Determination of Radon Exhalation. Raw Materials and Walls in existing Buildings. EU Work Shop ERRICCA, Athens 19.-23. April 1999, 32 - 33

[6] H. von Philipsborn, G. Just: Spot Measurements of Radon Exhalation from Building Materials. European Conference on Protection against Radon at Home and at Work. Prague, June 2-6, 1997. 289 - 293.

[7] H. von Philipsborn, R. Geipel: Uraniferous Granites characterized by their Radon Exhalation. 77. Jahrestagung Deutsche Mineralogische Gesellschaft. Wien 28. Aug.-1. Sept. 1999. Beiheft zum European J. of Mineralogy vol 11, (1999), 176.

[8] G. Just: Distribution of radioactive elements and heat production in the Erzgebirge. Geophys. Veröff. Univ. Leipzig, Bd IV, Heft 4, (1992), 93 - 101.