

Algorithmus zur Bestimmung der Potentiellen Alphaenergiekonzentration (PAEC) und Gleichgewichtsäquivalenten Radonkonzentration (EEC) der kurzlebigen Folgeprodukte von Rn-222 und Rn-220 bei Messung mit einem einfachen Messgerät

0. Allgemeines

Die Folgeprodukte des Rn-222 (im Folgenden Radonfolgeprodukte genannt) wie auch die des Rn-220 (im Folgenden Thoronfolgeprodukte genannt) sind Schwermetallatome (oder -Ionen) die in der Luft in unterschiedlicher Größenverteilung vorkommen. Entweder sind sie an Aerosolteilchen im Bereich von Teilchendurchmessern¹ (d_p) $30\text{ nm} < d_p < 500\text{ nm}$ angelagert oder existieren als sogenannte Cluster, die aus dem Atom oder Ion, an das sich Wassermoleküle angelagert haben, bestehen. Die Cluster werden als freier Anteil der Folgeprodukte bezeichnet und haben Durchmesser von ca. $0.5\text{ nm} < d_p < 10\text{ nm}$. Letztere haben wegen ihrer geringen Größe eine wesentlich größere Beweglichkeit und werden deshalb schneller auf festen Oberflächen im Raum abgeschieden. Einzelheiten zum Verhalten der Folgeprodukte in der Luft sollen hier nicht weiter beschrieben werden und hierzu auf die Website *radon-folgeprodukte.de* und auf die Literatur (*Porstendörfer*)² verwiesen werden. Zur Beurteilung der gesundheitlichen Gefährdung bei der Inhalation von Radon- oder Thoronfolgeprodukten wurde die Messgröße potenzielle Alphaenergiekonzentration (PAEC) definiert. Die Aufgabenstellung für Strahlenschutzmessungen besteht folglich darin, diese Größe messtechnisch zu erfassen. Für die Messung ist die Tatsache wichtig, dass die Folgeprodukte aus einem Luftstrom quantitativ auf einem Filter abgeschieden werden können und die Alphastrahlung, die von den gesammelten Folgeprodukten emittiert wird, mit bekannter Effektivität gemessen werden kann. Zur Berechnung der weiter unten beschriebenen Messgröße PAEC aus den gesammelten Folgeprodukten existieren verschiedene Algorithmen, die von den Mess- und Sammelzyklen abhängen. Für praktische Kurzzeitmessungen im Strahlenschutz im Bergbau wurden hierfür diverse Verfahren entwickelt, die hier jedoch nicht weiter behandelt werden sollen.

Der im Folgenden beschriebene Algorithmus basiert auf der Messung von Radon- und Thoronfolgeprodukten mit dem in der Bauanleitung der Website *radon-folgeprodukte.de* beschriebenen einfachen Messgerät. Für die Messung kann jedoch jedes Folgeproduktmessgerät, mit dem der unten beschriebene Zyklus realisiert werden kann, verwendet werden. Für die Messung von Radonfolgeprodukten ohne Berücksichtigung von Thoronfolgeprodukten ist kein Messzyklus erforderlich, sondern es genügt die kontinuierliche Abscheidung der Folgeprodukte aus einem Luftstrom auf einen Filter. Im Folgenden wird das Messverfahren mit den mathematischen Grundlagen für die getrennte Bestimmung von Radon- und Thoronfolgeprodukten beschrieben. Die Bestimmung der Radonfolgeprodukte ohne Korrektur bzgl. Thoronfolgeprodukte ist dabei inklusive.

1. Beschreibung des Messzyklus

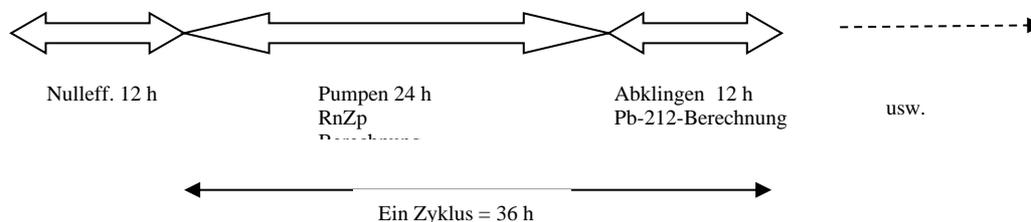
Der vorgeschlagene Messzyklus wird aus zwei Teilen gebildet. Im ersten Teil wird die zu messende Luft 24 h kontinuierlich mittels einer Pumpe durch ein Filter gesaugt und im zweiten Teil für 12 h die Pumpe abgeschaltet. Diese Abklingphase dient zur Bestimmung der Thoronfolgeprodukte, da nach 3 Stunden die Radonfolgeprodukte nahezu vollständig

¹ Gemeint ist hier der thermodynamische Durchmesser. Auf den Unterschied zwischen aerodynamischen und thermodynamischen Durchmesser soll hier nicht näher eingegangen werden.

² J. Porstendörfer *Properties and Behaviour of Radon and Thoron and Their Decay Products in the Air* J. Aerosol Sci Vol. 25, No. 2, S. 219-263, 1994

abklungen sind wegen die Thoronfolgeprodukte wegen der längeren Halbwertszeit von Pb-212 von ca. 10,6 h diese separat und ohne Beeinflussung bestimmt werden können. Die Registrierung der von den emittierten Alphateilchen verursachten Impulse erfolgt integrierend über jeweils 1 h, unabhängig vom Betrieb der Pumpe. Die während des 24 h Pumpzyklus registrierten Impulse dienen zur zeitaufgelösten Bestimmung der PAEC von Radonfolgeprodukten. Diese müssen jedoch nachträglich mit dem aus der Bestimmung der durch die Thoronfolgeprodukte verursachten Impulse korrigiert werden. Bei der Entwicklung des Algorithmus für Thoronfolgeprodukte wird vorausgesetzt, dass deren Konzentration während des Pumpzyklus konstant ist. Für die Bestimmung von Durchschnittswerten der Belastungssituation ist das bedeutungslos zumal die PAEC der Thoronfolgeprodukte auch deutlich geringeren Variationen unterliegt als die der Radonfolgeprodukte. Es ist sinnvoll nach einem Filterwechsel vor Beginn der Messungen den Nulleffekt zu messen. Dazu wird ein 12 h Intervall vor Beginn der eigentlichen Messungen eingeführt.

Zeitschema:



Im folgenden Punkt 2. wird der Algorithmus Berechnung von PAEC und EEC für die kurzlebigen Radonfolgeprodukten ohne Korrektur des Anteils von Thoronfolgeprodukten, d.h. für die Annahme, dass keine Thoronfolgeprodukte in der Luft vorhanden sind, hergeleitet. Im Punkt 3. erfolgt die Herleitung des Algorithmus zur Bestimmung der Thoronzerfallsprodukte aus dem Ergebnis der Impulsmessung während des Abklings in der zwölfstündigen Pumppause sowie die Korrektur der gemessenen Impulse während des Pumpens zur Bestimmung der PAEC der Radonfolgeprodukte.

2. Berechnung der PAEC und EEC von kurzlebigen Radonfolgeprodukten ohne Korrektur des Anteils von Thoronfolgeprodukten

Verwendete Formelzeichen:

- C_p : Potentielle Alphaenergiekonzentration der Radonfolgeprodukte,
- C_{eec} : Gleichgewichtsäquivalente Radonkonzentration,
- e_i : Energie der vom Nuklid i emittierten Alphateilchen,
- n_i : Anzahl der vom Nuklid i registrierten Alphateilchen,
- N_i : Zahl der Atome des Nuklides i ,
- I_i : Impulsrate
- Q : Luftdurchsatz,
- C_i : Konzentration des Nuklides i in der Luft in Atomen pro Volumeneinheit
- C_i^* : Aktivitätskonzentration des Nuklides i in der Luft $C_i^* = C_i \cdot \lambda_i$
- λ_i : Zerfallskonstanten des Nuklides i
- A_i : Aktivität des Nuklides i auf dem Filter $A_i = N_i \cdot \lambda_i$
- V : Volumen
- η_D : Effektivität des Nachweises der emittierten Alphateilchen

- η_F : Effektivität der Abscheidung von Radonfolgeprodukten auf dem Filter
 η : gesamte Effektivität des Nachweises der Alphateilchen $\eta = \eta_D \cdot \eta_F$
 i : Index der die Nuklide bezeichnet;
 $i = 1$ (oder a): Po-218
 $i = 2$ (oder b): Pb-214
 $i = 3$ (oder c): Bi/Po-214³
 α : Index für die gesamte Alphaaktivität

2.1 Allgemeines

Definitionsgemäß ist die PAEC die Energie, die ein beliebiges Gemisch von kurzlebigen RnZp in einem Luft-Volumenelement bis zum vollständigen Zerfall abgeben kann. Von allen, im Volumenelement V vorhanden Po-218-Atomen, das ist die Konzentration C_1 , werden primär Alphateilchen der Energie e_1 abgegeben. Über die Zerfallskette Pb-214 und Bi-214 wird schließlich noch einmal ein Alphateilchen der Energie von Po-214 e_3 abgegeben. Alle Atome der Nuklide Pb-214 und Bi-214 tragen sekundär nur über Po-214 zur PAEC bei:

$$C_p = e_1 \cdot C_1 + e_2 \cdot (C_1 + C_2 + C_3) \quad (2.1)$$

Angelehnt an diese Definition könnte man C_p bestimmen, indem man das Nuklidgemisch aus einem bestimmten Luftvolumen V auf ein Filter bringt und alle Zerfälle vom Beginn des Pumpens an und bis zum vollständigen Zerfall nach Beendigung des Pumpens registriert und mit der Energie der Alphastrahlung multipliziert. Das ist die Alphaenergie, die potenziell im Luftvolumen V vorhanden war. Die Alphateilchen werden dabei mit der Effektivität η vom Detektor angezeigt und als die letztendlich gezählten Impulse n_1 und n_3 registriert. Daraus ergibt sich die PAEC der kurzlebigen Radonfolgeprodukte

$$C_p = \frac{1}{V \cdot \eta} \cdot (e_1 \cdot n_1 + e_3 \cdot n_3) \quad (2.2)$$

Für Routinemessungen mit Zeitauflösung ist diese Bestimmung jedoch ungeeignet. Eine für Routinemessungen geeignete Methode ist die kontinuierliche Beaufschlagung eines Filters und Messung der Aktivität infolge Alphastrahlung im Gleichgewicht, das ca. 3 h nach Beginn der Filterbeaufschlagung (Pumpen) erreicht ist. Diese Messmethode wird vom beschriebenen Messgerät für den Eigenbau angewendet (*siehe auch Ausführungen in der Website radonfolgeprodukte.de*).

2.2 Berechnung der PAEC C_p

Im Weiteren sollen die mathematischen Zusammenhänge hier etwas ausführlicher beschrieben werden. Dazu wird der Zusammenhang von Filteraktivität und Luftkonzentration eines jeden Nuklides ausgehend von der Differentialgleichung, die das zeitliche Verhalten beschreibt, berechnet.

Zuerst muss die Aktivität auf dem Filter während der Probenahme berechnet werden. Für die Beaufschlagung des Filters bei konstanten Ansaugbedingungen (Volumenstrom Q) und konstanten Konzentrationen der Radonzerfallsprodukte C_i ergibt sich die Filteraktivität des Nuklides i aus der Differentialgleichung:

$$\frac{dN}{dt} = C_i \cdot Q + \lambda_{i-1} \cdot N_{i-1}(t) - \lambda_i \cdot N_i(t) \quad (2.3)$$

³ Po214 steht wegen der sehr kurzen Halbwertszeit immer im radioaktiven Gleichgewicht mit Bi214 und somit können die Aktivitäten gleichgesetzt werden.

Gleichung (2.3) kann dann ausgehend vom Po-218 als erstes Glied der Zerfallskette schrittweise für die folgenden Nuklide Pb214 und Bi/Po214 gelöst werden. Dabei wird im Fall von Po-218 der Anteil N_{i-1} gleich 0. Für die weiteren Nuklide wird das Ergebnis des vorherigen Nuklids in Gleichung (2.3) verwendet. Im Ergebnis erhält man die Anzahl der Atome auf dem Filter N_i und damit die Aktivitäten $A_i = \lambda_i \cdot N_i$ der einzelnen Nuklide auf dem Filter in Abhängigkeit von der Pumpzeit t_p ⁴.

$$A_1 = Q \cdot C_1 \cdot (1 - e^{\lambda_1 \cdot t_p}) \quad (2.4)$$

$$A_2 = Q \cdot C_1 \cdot \left[(1 - e^{\lambda_2 \cdot t_p}) + \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot (e^{\lambda_2 \cdot t_p} - e^{\lambda_1 \cdot t_p}) \right] + Q \cdot C_2 \cdot (1 - e^{\lambda_2 \cdot t_p}) \quad (2.5)$$

$$A_3 = Q \cdot C_1 \cdot \left[(1 - e^{\lambda_3 \cdot t_p}) + \frac{\lambda_3}{\lambda_2 - \lambda_3} \cdot (e^{\lambda_2 \cdot t_p} - e^{\lambda_3 \cdot t_p}) + \frac{\lambda_2 \cdot \lambda_3}{\lambda_1 - \lambda_2} \cdot \left(\frac{e^{\lambda_1 \cdot t_p} - e^{\lambda_3 \cdot t_p}}{\lambda_3 - \lambda_1} - \frac{e^{\lambda_2 \cdot t_p} - e^{\lambda_3 \cdot t_p}}{\lambda_3 - \lambda_2} \right) \right] + Q \cdot C_2 \cdot \left[(1 - e^{\lambda_3 \cdot t_p}) + \frac{\lambda_3}{\lambda_2 - \lambda_3} \cdot (e^{\lambda_2 \cdot t_p} - e^{\lambda_3 \cdot t_p}) \right] + Q \cdot C_3 \cdot (1 - e^{\lambda_3 \cdot t_p}) \quad (2.6)$$

Für die gesamte Aktivität der Alphastrahlung während der Beaufschlagung ohne Trennung nach den Energien e_1 und e_3 gilt:

$$A_\alpha(t) = A_1(t) + A_3(t) \quad (2.7)$$

Nach hinreichend langer Zeit ($t > 3h$) gehen die Ausdrücke (2.4) bis (2.6) über in:

$$A_1 = Q \cdot C_1 \quad (2.8)$$

$$A_2 = Q \cdot (C_1 + C_2),$$

$$A_3 = Q \cdot (C_1 + C_2 + C_3) \quad (2.9)$$

Und für die gesamte Alphaaktivität gilt:

$$A_\alpha = Q \cdot (2 \cdot C_1 + C_2 + C_3). \quad (2.10)$$

Die Definitionsgleichung (2.1) für C_p geht ohne wesentliche Fehler ($< 5\%$ rel.) in die Gleichung

$$C_p = e_m \cdot (2 \cdot C_1 + C_2 + C_3) \quad (2.11)$$

über, wenn man für die Energien e_a und e_c mit einer mittleren Energie $e_m = 7,5 \text{ MeV}$ rechnet. Bei der Herleitung dieser mittleren Energie wird berücksichtigt, dass die Anzahl der Po-218 Atome wegen der kleineren Halbwertszeit deutlich kleiner ist, als die der folgenden Nuklide.

Aus (2.10) und (2.11) folgt somit der Zusammenhang zwischen der gesuchten Messgröße PAEC C_p und der Aktivität der Alphastrahlung auf dem Filter A_α :

$$C_p = \frac{e_m \cdot A_\alpha}{Q} \quad (2.12)$$

Die Alphaaktivität A_α erhält man aus der gemessenen Impulsrate $I_\alpha = \frac{n_\alpha}{t_m}$ mit $A_\alpha = \frac{I_\alpha}{\eta}$.

⁴ C. Feddersen, E. Dagen *Berechnung der Konzentration von Radon-Folgeprodukten in Luft* Report SAAS-257, 1980

Berücksichtigt man dann noch, dass die Effektivität des Nachweises eines Zerfalls

$\eta = \eta_F \cdot \eta_D$ ist, wird Gleichung (2.12) zu

$$C_p = \frac{e_m \cdot n_\alpha}{Q \cdot \eta_F \cdot \eta_D \cdot t_m} \quad (2.13)$$

Gleichung (2.13) ist die Grundlage für die Berechnung der potentiellen Alphaenergiekonzentration aus dem Messwert der Impulsrate $I_\alpha = \frac{n_\alpha}{t_m}$

(siehe auch radon-folgeprodukte.de).

2.3 Berechnung der EEC C_{eec}

Für verschiedene Betrachtungen ist das Konzept der Gleichgewichtsäquivalenten Radonkonzentration vorteilhaft. Insbesondere wenn der Grad der Abreicherung von Folgeprodukten aus der Luft eingeschätzt werden soll. Das ist für Modellbetrachtungen zum Verhalten der Folgeprodukte im Zusammenhang mit dem sogenannten Raummodell wichtig. Das Raummodell beschreibt die Konzentration der Folgeprodukte in Abhängigkeit von verschiedenen Einflussparametern. Als solche kommen z.B. Luftwechsel im Raum, Ablagerung auf Oberflächen und Anlagerung an Aerosolpartikel in Betracht. Dazu wird auf die Literatur (Porstendörfer, Jakobi)⁵ verwiesen. Auch in der Website radon-folgeprodukte.de ist dazu Näheres gesagt.

Definitionsgemäß ist die Gleichgewichtsäquivalente Radonkonzentration (EEC) die *fiktive* Radonkonzentration, die im Gleichgewicht mit den Folgeprodukt nukliden die gleiche PAEC hat wie das tatsächlich vorhandene Gemisch von Folgeprodukt nukliden.

Zur Herleitung des Zusammenhangs von PAEC zu EEC ersetzt man in Gleichung (2.11) die Konzentrationen C_i der Atome pro Volumeneinheit durch die Aktivität pro Volumeneinheit. Der Zusammenhang von Atomkonzentration und Aktivitätskonzentration ist durch die Beziehung

$$C_i^* = \lambda_i \cdot C_i \quad (2.14)$$

gegeben. Somit kann Gleichung (2.11) in der Form

$$C_p = e_m \cdot \left(2 \cdot \frac{C_1^*}{\lambda_1} + \frac{C_2^*}{\lambda_2} + \frac{C_3^*}{\lambda_3} \right) \quad (2.15)$$

geschrieben werden.

Da alle Aktivitätskonzentrationen der Folgeprodukt nuklide definitionsgemäß im Gleichgewicht mit der EEC sein sollen, d.h. sie sind auch untereinander gleich, gilt:

$$C_{eec} = C_1^* = C_2^* = C_3^* \quad (2.16)$$

und damit

$$C_p = e_m \cdot C_{eec} \cdot \left(2 \cdot \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3} \right) \quad (2.17)$$

⁵ J. Porstendörfer *Properties and Behaviour of Radon and Thoron and Their Decay Products in the Air*
J. Aerosol Sci Vol. 25, No. 2, S. 219-263, 1994

W. Jacobi *Activity and Potential α -Energy of 222Radon- and 220Radon-Daughters in different Air Atmospheres*
Health Physics, Vol. 22, S. 441-450, 1972

oder

$$C_{eec} = \frac{C_p}{e_m \cdot \left(2 \cdot \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3}\right)}. \quad (2.18)$$

Berücksichtigt man Gleichung (2.12) wird aus Gleichung (2.18)

$$C_{eec} = \frac{A_\alpha}{Q \cdot \left(2 \cdot \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3}\right)}. \quad (2.19)$$

Ausgedrückt in den messtechnisch relevanten Größen

- Impulse n_α ,
- Messzeit t_m und
- Nachweiseffektivität $\eta = \eta_D \cdot \eta_F$

wird Gleichung (19) zu

$$C_{eec} = \frac{n_\alpha}{Q \cdot \eta_D \cdot \eta_F \cdot t_m \cdot \left(2 \cdot \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3}\right)}. \quad (2.20)$$

2.4 Umrechnung von PAEC in EEC

Ausgehend von Gleichung (2.1) können die Umrechnungsfaktoren von EEC zu PAEC oder umgekehrt exakt berechnet werden. Dabei kann die Näherung, die für den messtechnischen Zusammenhang (Konzept der mittleren Alphaenergie) wieder rückgängig gemacht werden.

Gleichung (2.15) kann dann mit den getrennten Energien e_1 und e_3 in der Form

$$C_p = e_1 \cdot \frac{C_1^*}{\lambda_1} + e_3 \cdot \left(\frac{C_1^*}{\lambda_1} + \frac{C_2^*}{\lambda_2} + \frac{C_3^*}{\lambda_3}\right) \quad (2.21)$$

geschrieben werden. Da für die EEC die Gleichung (2.16) gilt, ergibt sich für das Verhältnis von PAEC zu EEC:

$$\frac{C_p}{C_{eec}} = e_1 \cdot \frac{1}{\lambda_1} + e_3 \cdot \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} + \frac{1}{\lambda_3}\right) \quad (2.22)$$

Auf der rechten Seite von Gleichung (2.22) stehen nur Naturkonstanten und damit entsteht ein fester Zusammenhang zwischen PAEC zu EEC.

Mit den Zerfallskonstanten

$$\lambda_1 = 0,0037877 \text{ s}^{-1}$$

$$\lambda_2 = 0,00043107 \text{ s}^{-1}$$

$$\lambda_3 = 0,00058053 \text{ s}^{-1}$$

und den Werten der Energien

$$e_1 = 6.0 \text{ MeV}$$

$$e_3 = 7.69 \text{ MeV}$$

wird Gleichung (2.22) zu

$$\frac{C_p}{C_{eec}} = 1584.07 \text{ MeV} \cdot \text{s} + 33116,1 \text{ MeV} \cdot \text{s}$$

(der Bezug zum Volumen V hebt sich auf)

$$\frac{C_p}{C_{eec}} = 34700 \text{ MeV} \cdot \text{s}.$$

Die Dimension s steht für $\frac{1}{\text{Bq}}$.

Die gebräuchlichen Maßeinheiten für C_p sind MeV/cm^3 und nJ/m^3 . Damit ergibt sich für die Umrechnung von *EEC in PAEC*:

$$1 \text{ Bq}/\text{m}^3 = 0.0347 \text{ MeV}/\text{cm}^3$$

$$1 \text{ Bq}/\text{m}^3 = 5.559 \text{ nJ}/\text{m}^3.$$

oder für die Umrechnung *PAEC in EEC*:

$$1 \text{ MeV}/\text{cm}^3 = 28.82 \text{ Bq}/\text{m}^3$$

$$1 \text{ nJ}/\text{m}^3 = 0,18 \text{ Bq}/\text{m}^3.$$

2.5 Anwendungsgleichung für die Berechnung von PAEC und EEC bei kontinuierlicher Messung

Für Gleichung (2.20) kann auch eine Zahlenwertgleichung in gebräuchlichen Maßeinheiten erhalten werden.

Der Klammerausdruck in Gleichung (2.20) beträgt

4570,4 s.

Allgemein kann Gleichung (2.20) als

$$C_{eec} = \frac{a \cdot n_\alpha}{Q \cdot \eta_F \cdot \eta_D \cdot t_m} \quad (2.23)$$

geschrieben werden.

Wobei a eine von den Maßeinheiten abhängige Größe ist.

Für das Ergebnis in den gebräuchlichen Maßeinheiten ergeben sich für den Faktor a jeweils für die Messzeiten

- t_m in min und
- t_m in s

folgende Werte:

	C_{eec}	C_p	
	Bq/m ³	MeV/cm ³	nJ/m ³
t_m in min	0,219	0,00759	1,22
t_m in s	13,13	0,456	72,98

Dabei wurden die Faktoren für die Umrechnung von PAEC in EEC, die im vorherigen Abschnitt hergeleitet wurden, verwendet.

Gleichung (2.23) ist die im Menüpunkt „Auswertung“ der Website radon-folgeprodukte.de verwendete Gleichung.

Die Gleichung (2.23) setzt natürlich voraus, dass vom Detektor nur Impulse registriert werden, die von Folgeprodukten des Rn-222 (Radonfolgeprodukte) emittiert wurden. Das kann in der ersten Näherung für die meisten (in Deutschland) vorkommenden Messbedingungen angenommen werden. Für genauere Messungen sollten jedoch die immer ebenfalls vorhandenen Thoronfolgeprodukte berücksichtigt werden. Dazu muss die gemessene Impulsrate nachträglich korrigiert werden. Grundlage für die Korrektur ist die Kenntnis der mittleren Thoronfolgeprodukt-Konzentration während des Pumpzyklus. Im Folgenden Kapitel 3. wird die Berechnung der PAEC der Thoronfolgeprodukte aus den Ergebnissen der Impulsmessung während der zwölfstündigen Pumppause beschrieben und darauf aufbauend die Korrektur der Impulsraten für die Bestimmung der Radonfolgeprodukte hergeleitet.

3. Herleitung des Algorithmus zur Bestimmung der PAEC durch Rn-220-Folgeprodukte:

Die in diesem Kapitel verwendeten Formelzeichen weichen etwas von den im Kapitel 2 verwendeten ab und einige werden zusätzlich benötigt. Deshalb werden diese hier neu definiert und nur für das Kapitel 3 verwendet.

Verwendete Formelzeichen:

$N^i(t)$: Anzahl der aktuell auf dem Filter neu akkumulierten Atome Pb-212 auf dem Filter zur Zeit t während des Pumpens

N_E^i : Anzahl der aktuell auf dem Filter neu akkumulierten Atome Pb-212 auf dem Filter bei Beendigung des Pumpens

$A^i(t)$: Aktivität von Pb-212 auf dem Filter, die aus den neu akkumulierten Atome Pb-212 während des Pumpens zur Zeit t gebildet wird

A_E^i : Aktivität von Pb-212 auf dem Filter, die aus den neu akkumulierten Atome Pb-212 während des Pumpens gebildet wird am Ende des Pumpens

\dot{Q} : Luftdurchsatz durch das Filter

C_{Pb}^i : Konzentration von Pb-212 in der Luft während des Zyklus i (Teilchenkonzentration)

\tilde{C}_{Pb}^i : Aktivitätskonzentration von Pb-212 in der Luft während des Zyklus i

C_{eec}^{Tn} : Gleichgewichtsäquivalente Thoronkonzentration (Rn220)

C_{eec}^{Rn} : Gleichgewichtsäquivalente Radonkonzentration (Rn222)

C_p^{Tn} : Potentielle Alphaenergiekonzentration Thoron (Rn220)

C_p^{Rn} : Potentielle Alphaenergiekonzentration Radon (Rn222)

e_{Bi} : Energie der beim Zerfall von Bi-212-Atomen emittierten Alphateilchen

- e_{Po} : Energie der beim Zerfall von Po-212-Atomen emittierten Alphateilchen
 t_a : Zeit nach Beendigung des Pumpens bis zum Beginn der Impulszählung
 t_e : Zeit nach Beendigung des Pumpens bis zum Ende der Impulszählung⁶
 t_p : Pumpzeit (=24 h)
 t_z : Zykluszeit (=36 h)
 Z^i : Impulssumme zwischen 3. Und 12. Stunde nach Beendigung des Pumpens
 $Z^j(i)$: Impulssumme des Intervalls j im Zyklus i
 n_{korr}^j : Impulssumme, die von den Thoronfolgeprodukten im aktuellen Pumpzyklus und aus der Restaktivität der Thoronfolgeprodukte des vorherigen resultiert
 λ, λ_{Pb} : Zerfallskonstante von Pb-212= 0,0654 h⁻¹
 λ_{Bi} : Zerfallskonstante von Bi-212= 0,686 h⁻¹
 i : Index der Zyklusnummern
 j : Index der Zählintervalls im Zyklus i

3.1 Allgemeines

Bei dem verwendeten Messzyklus ist die Bestimmung der PAEC für Thoronfolgeprodukte nur als Mittelwert über die Pumpzeit von 24 h möglich. Für eine Beurteilung der Situation bezüglich des Anteils von Thoronfolgeprodukten an der gesamten PAEC ist das jedoch kein Problem. Es muss vorausgeschickt werden, dass Die PAEC der Thoronfolgeprodukte fast ausschließlich vom Pb-212 mit einer Halbwertszeit von ca. 10,6 h und nur zu einem geringen Anteil vom Bi-212 verursacht wird. Für die Bestimmung der PAEC ist es auch nicht erheblich, ob Pb-212 oder Bi-212-Atome auf dem Filter abgeschieden werden. Das abgeschiedene Pb-212 zerfällt auf dem Filter zum Bi-212.

Für die Messung der PAEC wird deshalb vereinfachend angenommen, dass die gesamte Alphaaktivität auf dem Filter vom Pb-212 in der Luft verursacht wird. Deshalb besteht die Aufgabe darin, aus der akkumulierte Aktivität (Alpha) die Aktivitätskonzentration des Pb-212- in der Luft zu bestimmen. Weiterhin muss beachtet werden, dass die gemessenen Impulse nicht direkt vom Pb-212 emittiert werden, sondern aus dem Zerfallsschema resultierend vom Po-212 (ca. 65% mit einer Energie von 8,78 MeV) und Bi-212 (ca. 25% mit 6,05 MeV und 10% mit 6,09 MeV). Diese Nuklide befinden sich beim verwendeten Messzyklus aufgrund ihrer Zerfallskonstanten mit Pb-212 im Gleichgewicht und die Summe aus den Anteilen entspricht der Pb-212-Aktivität. Da bei dem beschriebenen Messverfahren keine Spektrometrie betrieben wird, spielt die Aufteilung in verschiedene Energien keine Rolle.

Zuerst wird unter Punkt 3.2 die Aktivität des Pb-212 A_{Pb} auf dem Filter in Abhängigkeit von der Konzentration des Pb-212 (Atome) C_{Pb} berechnet; daraus wiederum werden im Punkt 3.3 die Impulssummen in den Abklingphasen bestimmt. Diese stellen dann den Zusammenhang zwischen den Impulssummen und der Pb-212-Konzentration her. Dazu muss noch bemerkt werden, dass die Impulssummen neben der im aktuellen Zyklus (i) gesammelten Aktivität noch die Restaktivität aus den vorangegangenen Zyklen ($i-1$) und ($i-2$) berücksichtigt und korrigiert werden muss.

Weiterhin können die so bestimmten Impulssummen zur Korrektur der Messwerte für die Bestimmung der PAEC der Radonfolgeprodukte verwendet werden (Punkt 3.5).

3.2 Berechnung der Filteraktivität Pb-212

Zuerst wird die Anzahl der Atome des Nuklides Pb-212 $N^i(t)$, die infolge des Pumpvorganges im aktuellen Zyklus auf dem Filter akkumuliert werden, in Abhängigkeit von der Zeit berechnet.

⁶ Das ist auch das Ende des Zyklus und der Beginn des Pumpens für den nächsten Zyklus

$$\frac{dN^i}{dt} = \dot{Q} \cdot C_{Pb}^i - \lambda \cdot N^i \quad (3.1)$$

$$N^i(t) = \frac{1}{\lambda} \cdot \dot{Q} \cdot C_{Pb}^i (1 - e^{-\lambda \cdot t}) \quad \text{mit } N^i(0) = 0 \quad (3.2)$$

Am Ende eines jeden Pumpzyklus i ist die dabei akkumulierte Aktivität von Pb-212 auf dem Filter A_E^i folglich:

$$A_E^i = \dot{Q} \cdot C_{Pb}^i (1 - e^{-\lambda \cdot t_p}) \quad (3.3)$$

Wobei C_{Pb}^i die zu bestimmende Konzentration (Atome/Volumeneinheit) von Pb-212 in der Luft während des i -ten Zyklus ist. Für die Berechnung wird diese während der Messung als konstant angenommen.

3.3 Berechnung der Impulssummen in der Abklingphase:

Zur Bestimmung der Pb-212-Aktivitätskonzentration erfolgt die Messung der Impulssumme infolge des Zerfalls der auf dem Filter gesammelten Pb-212-Atome (über Bi-212 und Po-212). Die Summe der Alphazerfälle, die für die Messung verwendet wird, ist das Integral von $t_a = 3h$ bis $t_e = 12h$ (nach Pumpende) und setzt sich zusammen aus dem Aktivitätsanteil A_E^i , der während des Pumpens im Zyklus i gesammelt wurde und den abklingenden Anteilen aus den vorherigen 2 Zyklen ($i - 1$) und ($i - 2$). Die Summe der Alphazerfälle aus den jeweiligen Zyklen ergibt sich durch ungestörte Superposition der 3 Anteile.

Die Alphazerfälle werden vom Detektor mit der Nachweiswahrscheinlichkeit η registriert. Damit besteht zwischen der registrierten Anzahl der Impulse Z und der Aktivität A der Zusammenhang

$$Z^i = \eta \cdot \int_{t_a}^{t_e} A^i(t) dt \quad (3.4)$$

Für die abklingende Aktivität $A^i(t)$ von Pb-212 nach Beendigung des Pumpens beim Zyklus i gilt:

$$A^i(t) = A_E^i \cdot e^{-\lambda t} \quad (3.5)$$

Der daraus resultierende Anteil an der Impulssumme Z^i wird deshalb:

$$Z^i = \eta \cdot A_E^i \cdot \frac{1}{\lambda} (e^{-\lambda \cdot t_a} - e^{-\lambda t_e}). \quad (3.6)$$

Mit $A_E^i = \dot{Q} \cdot C_{Pb}^i \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_p})$ wird Z^i

$$Z^i = \dot{Q} \cdot C_{Pb}^i \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_p}) \cdot \eta \cdot \frac{1}{\lambda} \cdot (e^{-\lambda \cdot t_a} - e^{-\lambda t_e}) \quad (3.7)$$

Analog gilt für den Anteil aus der Restaktivität des letzten Zyklus ($i - 1$)

$$Z^{i-1} = \eta \cdot \int_{t_z+t_a}^{t_z+t_e} A_R^{i-1}(t) dt \quad (3.8)$$

$$Z^{i-1} = \dot{Q} \cdot C_{Pb}^{i-1} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_p}) \cdot \eta \cdot \frac{1}{\lambda} (e^{-\lambda \cdot (t_z+t_a)} - e^{-\lambda \cdot (t_z+t_e)}) \quad (3.9)$$

und des vorletzten Zyklus (i-2)

$$Z^{i-2} = \eta \cdot \int_{2t_z+t_a}^{2t_z+t_e} A_R^{i-2}(t) dt \quad (3.10)$$

$$Z^{i-2} = Q \cdot C_{Pb}^{i-2} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_p}) \cdot \eta \cdot \frac{1}{\lambda} (e^{-\lambda \cdot (2 \cdot t_z + t_a)} - e^{-\lambda \cdot (2 \cdot t_z + t_e)}) \quad (3.11)$$

Die Impulssumme, die nach dem aktuellen Zyklus i zwischen t_a und t_e gemessen wird beträgt dann:

$$Z = Z^i + Z^{i-1} + Z^{i-2} \quad (3.12)$$

Mit Hilfe der Gleichungen (3.7), (3.9) und (3.11) kann die gesuchte Aktivitätskonzentration C_{Pb}^i für einen Zyklus i unter Berücksichtigung der Ergebnisse der vorausgegangenen Zyklen $i - 1$ und $i - 2$ berechnet werden.

Mit den Bezeichnungen:

$$E_0 = (1 - e^{-\lambda \cdot t_p}), \quad (3.13a)$$

$$E_1 = (e^{-\lambda \cdot t_a} - e^{-\lambda t_e}), \quad (3.13b)$$

$$E_2 = (e^{-\lambda \cdot (t_z + t_a)} - e^{-\lambda \cdot (t_z + t_e)}), \quad (3.13c)$$

$$E_3 = (e^{-\lambda \cdot (2 \cdot t_z + t_a)} - e^{-\lambda \cdot (2 \cdot t_z + t_e)}) \text{ und} \quad (3.13d)$$

$$a = Q \cdot E_0 \cdot \frac{\eta}{\lambda}$$

ergibt sich

$$Z^i = a \cdot C_{Pb}^i \cdot E_1 + a \cdot C_{Pb}^{i-1} \cdot E_2 + a \cdot C_{Pb}^{i-2} \cdot E_3 \quad (3.14)$$

und damit

$$C_{Pb}^i = \frac{1}{a \cdot E_1} \cdot (Z - a \cdot C_{Pb}^2 \cdot E_2 - a \cdot C_{Pb}^3 \cdot E_3). \quad (3.15)$$

Gleichung (3.15) ergibt die Teilchenkonzentration pro Volumen. Die Aktivitätskonzentration des Pb-212 \tilde{C}_{Pb}^i ist dann

$$\tilde{C}_{Pb}^i = \lambda \cdot C_{Pb}^i \quad (3.16)$$

Unter Berücksichtigung der Ausdrücke (3.13a-d) kann mit den Gleichungen (3.15) und (3.16) die Aktivitätskonzentration von Pb-212 in der Luft \tilde{C}_{Pb}^i für den aktuellen Zyklus i berechnet werden. Die Restaktivität aus den vorangegangenen Zyklen wird berücksichtigt.

3.4 Umrechnung in PAEC Thoronfolgeprodukte C_p^{Tn}

Die gebräuchliche Maßeinheit für die Aktivitätskonzentration \tilde{C}_{Pb}^i ist Bq/m^3 . Zur Umrechnung in die für die PAEC (C_p^{Tn}) übliche Maßeinheit nJ/m^3 muss die Aktivitätskonzentration mit der Energie der emittierten Alphateilchen multipliziert werden. Dabei ist zu berücksichtigen, dass in der gesammelten Aktivität neben dem Pb212 auch ein gewisser Anteil Bi212 ist, der hier vereinfachend als Pb212 angenommen wurde.

$$C_{eec}^{Tn} \approx \tilde{C}_{Pb} \quad (3.17)$$

Damit wird die gemessene Aktivitätskonzentration in Anlehnung zur Definition der gleichgewichtsäquivalenten Radonkonzentration EEC ebenfalls als EEC für Thoron interpretiert. Für die Definitionsgleichung muss aber der Bi-212-Anteil berücksichtigt werden.

$$C_p^{Tn} = C_{eec}^{Tn} \cdot e_m \left(\frac{1}{\lambda_{Bi}} + \frac{1}{\lambda_{Pb}} \right) \quad (3.18)$$

Die von der im Volumenelement bis zum vollständigen Zerfall emittierte Alphaenergie e_m ist dann zu 35 % die des Bi-212 und zu 65 % die des Pb212. Die Anteile resultieren aus dem Zerfallsschema der Thoronfolgeprodukte.

$$e_m = 0.35 \cdot e_{Bi} + 0.65 \cdot e_{Po} \quad (3.19)$$

Mit

$$e_{Bi} = 6,06 \text{ MeV} \text{ und } e_{Po} = 8,78 \text{ MeV}$$

wird

$$e_m = 7,8 \text{ MeV} = 1.25 \cdot 10^{-3} \text{ nJ}$$

Der Klammerausdruck in Gleichung (3.18) ist 60299 s. Damit wird Gleichung (3.18) zu

$$C_p^{Tn} = C_{eec}^{Tn} \cdot 1.25 \cdot 10^{-3} \text{ nJ} \cdot 60299 \text{ s} \quad (3.20)$$

Für $C_{eec}^{Tn} = 1 \text{ Bq}/m^3$ ergibt sich der Wert für $C_p^{Tn} = 75,4 \text{ nJ}/m^3$.

3.5 Korrektur der Impulsraten zur Bestimmung der PAEC der Radonfolgeprodukte während des 24h - Pumpzyklus

Für die Korrektur der während der Pumpphase registrierten Impulse bzgl. des Anteils von Thoronfolgeprodukten wird die nachträglich in der Abklingphase bestimmte Konzentration der Thoronfolgeprodukte, das ist annähernd die Konzentration von Pb-212 (C_{Pb}), verwendet.

Der Beitrag aus der im aktuellen Pumpzyklus i akkumulierten Pb-212-Aktivität $A_{Pb}^i(t)$ wird aus der Aktivitätskonzentration \tilde{C}_{Pb}^i bestimmt. Für diesen Anteil ist die Anfangsaktivität $A_{Pb}^i(0) = 0$. Daraus ergibt sich für $A_{Pb}^i(t)$

$$A_{Pb}^i(t) = Q \cdot \frac{\tilde{C}_{Pb}^i}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3.21)$$

Daraus wird die Impulssumme Z^j , die aus der akkumulierten Aktivität $A_{pb}^i(t)$ in der jeweiligen Messzeit j der 24-h-Pumpphase (1h-Intervall) berechnet. Die Zählung der Messzeiten in der Pumpphase beginnt mit $j = 1$. Damit muss die Integration über die erste Messzeit j von $t_a = 0$ bis $t_e = t_m$ erfolgen. Für die Messzeiten gilt allgemein:

$t_a = (j - 1) \cdot t_m$ und $t_e = (j) \cdot t_m$ wobei t_m hier immer $t_m = 1$ h ist. Damit gilt für das Intervall j des Zyklus i :

$$Z^j(i) = Q \cdot \frac{\tilde{C}_{pb}^i}{\lambda} \cdot \eta \cdot \int_{t_a}^{t_e} (1 - e^{-\lambda t}) dt = Q \cdot \frac{\tilde{C}_{pb}^i}{\lambda} \cdot \eta \cdot \left[t + \frac{1}{\lambda} \cdot e^{-\lambda t} \right]_{(j-1)t_m}^{j \cdot t_m} . \quad (3.22)$$

Damit ergibt sich $Z^j(i)$:

$$Z^j(i) = Q \cdot \frac{\tilde{C}_{pb}^i}{\lambda} \cdot \eta \cdot \left[t_m - \frac{1}{\lambda} \cdot (e^{-\lambda(j-1)t_m} - e^{-\lambda j t_m}) \right] . \quad (3.23)$$

Wegen der Halbwertszeit des Pb-212 von 10.6 h ist die Restaktivität des vorherigen Zyklus ($i - 1$) nicht vollständig zu vernachlässigen und muss für die Korrektur berücksichtigt werden. Analog zu Gleichung (3.23) gilt für die Anzahl der Impulse, die von der aktuellen Impulszahl für die Korrektur abgezogen werden muss:

$$Z^j(i - 1) = Q \cdot \frac{\tilde{C}_{pb}^{i-1}}{\lambda} \cdot \eta \cdot \left[t_m - \frac{1}{\lambda} \cdot (e^{-\lambda(j-1)(t_m+t_z)} - e^{-\lambda j(t_m+t_z)}) \right] . \quad (3.24)$$

Zur Korrektur der für Berechnung von PAEC und EEC der Radonfolgeprodukte muss von der Impulszahl n_α , die Grundlage für die Berechnungen nach Gleichungen (2.13) und (2.20) ist, die Impulszahl⁷

$$Z^j = Z^j(i) + Z^j(i - 1) \quad (3.25)$$

abgezogen werden. Damit wird

$$n_\alpha^{korr}(j) = n_\alpha(j) - Z^j . \quad (3.26)$$

4. Zusammenfassung

Der Artikel beschreibt einen Meszyklus zur Bestimmung der PAEC von Radon- und Thoronfolgeprodukten. Dazu wurden die mathematischen Grundlagen zur Auswertung der Impulsmessungen sowie der Zusammenhang der Messgrößen PAEC und EEC hergeleitet.

Für die Berechnung der PAEC der Radonfolgeprodukte bei Anwendung der kontinuierlichen Messung (ohne Pumppause) ohne Korrektur der Impulsraten bzgl. des Anteils von Thoronfolgeprodukten wird Gleichung (2.13) verwendet. Wird die Korrektur bei Anwendung des Messzyklus durchgeführt, muss die korrigierte Impulszahl n_α^{korr} nach Gleichung (3.26) unter Berücksichtigung der Gleichungen (3.23), (3.24) und (3.25) verwendet werden.

Die Berechnung der PAEC und EEC für Thoronfolgeprodukte erfolgt mit den in den Pumpausen, das sind die Zeiten $t=3$ h bis 12 h, gemessenen Impulszahlen. Dabei wird nach den Gleichungen (3.15) und (3.16) die Aktivitätskonzentration Pb-212 in der Luft \tilde{C}_{pb} berechnet und schließlich unter Berücksichtigung von Gleichung (3.17) nach Gleichung (3.20) die PAEC der Thoronfolgeprodukte C_p^{Tn} bestimmt.

⁷ Hier wird der Einfachheit halber nur ein vergangener Zyklus berücksichtigt.