

Verfahren zur Bestimmung der mittleren Radon-222-Aktivitätskonzentration mit Elektretdetektoren

K-Rn-222-LUFT-02

Bearbeiter:

T. Beck

Leitstelle für Fragen der Radioaktivitätsüberwachung
bei erhöhter natürlicher Radioaktivität (ENORM)

Verfahren zur Bestimmung der mittleren Radon-222-Aktivitätskonzentration mit Elektretdetektoren

1 Anwendbarkeit

Dieses Verfahren ist für die Überwachung der mittleren Rn-222-Aktivitätskonzentration im Freien oder in der Raumluft mittels integrierender Langzeitmessungen geeignet. Für Expositionsdauern von länger als 3 Monaten können Rn-222-Aktivitätskonzentrationen im Bereich von $30 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis ca. $1500 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ erfasst werden. Damit erfüllt das Verfahren die Anforderungen der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung bei bergbaulichen Tätigkeiten (REI Bergbau).

2 Probeentnahme

2.1 Aufbau der Probeentnahmeeinrichtung

Die Probeentnahmeeinrichtung besteht aus einer Kammer, in welcher ein Elektretdetektor enthalten ist. Das empfindliche Volumen wird von der Kammerwand und einem Filter umschlossen. Die Probeentnahmeeinrichtung E-PermTM Typ L ist für

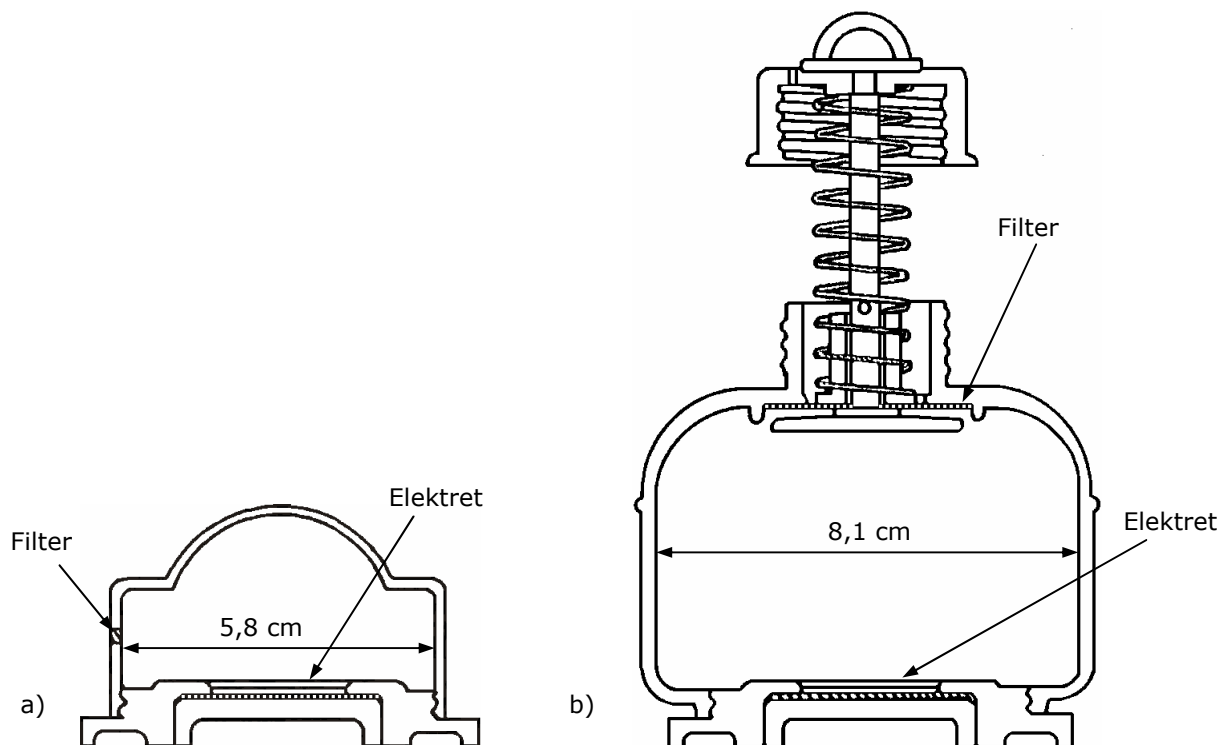


Abb. 1: Aufbau von Probeentnahmeeinrichtungen mit Elektretdetektoren zur Bestimmung der mittleren Rn-222-Aktivitätskonzentration
a) E-PermTM Typ L und b) E-PermTM Typ S

die ständige Probeentnahme vorgesehen (Abbildung 1a). Bei Verwendung der Probeentnahmeeinrichtung E-PermTM Typ S kann durch manuelles Öffnen und Schließen der Probeentnahmeeinrichtung der Zeitpunkt und die Dauer der Probeentnahme variiert werden (Abbildung 1b).

2.2 Anforderung an die Probeentnahmeeinrichtung

Die Probeentnahmeeinrichtung muss so beschaffen sein, dass Rn-222 in das empfindliche Volumen eindringen kann, während die in der umgebenden Atmosphäre befindlichen Radon-Zerfallsprodukte außerhalb der Kammer verbleiben. Durch hinreichend große Diffusionszeiten von mehr als 3 Minuten oder andere messtechnische Vorkehrungen muss sichergestellt werden, dass der Messeffekt durch das ebenfalls aus der umgebenden Atmosphäre in das empfindliche Volumen diffundierende Rn-220 vernachlässigbar ist.

Die Probeentnahmeeinrichtung ist sowohl vor extremen klimatischen Einflüssen, wie z. B. Temperatur und Nässe, als auch vor mechanischer Beschädigung geschützt aufzustellen. Der Einsatz von hydrophobem Filtermaterial reduziert zusätzlich den Einfluss von Feuchtigkeit auf die Probeentnahme. Bei Probeentnahmen unter extremen Feuchtebedingungen (relative Luftfeuchte größer 95 %) ist mit undefiniertem Spannungsabfall an den Elektreten zu rechnen. In solchen Fällen sind mehrere Probeentnahmeeinrichtungen aufzustellen.

Es sind nur Probeentnahmeeinrichtungen zu verwenden, die die für den Messzweck erforderlichen physikalisch-technischen Eigenschaften besitzen und regelmäßigen anerkannten Vergleichsprüfungen unterliegen.

2.3 Standort der Probeentnahmeeinrichtung

Die radondicht verpackten und gekennzeichneten Probeentnahmeeinrichtungen werden am Probeentnahmeort der Verpackung entnommen und aufgestellt. Probeentnahmesysteme E-PermTM Typ S werden am Probeentnahmeort geöffnet. Weitere Hinweise zum Standort der Probeentnahmeeinrichtungen sind im Verfahren K-Rn-222-LUFT-01 beschrieben.

3 Analyse

3.1 Prinzip des Verfahrens

Elektrete sind Festkörper mit einer quasipermanenten elektrischen Ladung, die durch die Ausrichtung von inneren Dipolen und vom im Material befindlichen Ladungszentren erzeugt wird. Quasipermanent bedeutet, dass die von außen messbare Oberflächenladung der Elektrete in Abhängigkeit von den elektrischen Eigenschaften des Materials nur sehr langsam abnimmt. Für die Betrachtung des elektrischen Feldes außerhalb des Elektreten kann die Gesamtheit aller Ladungen im Elektretmaterial durch eine angenommene Oberflächenladung ersetzt werden. Bei platten- oder scheibenförmigen Elektreten ergibt die Differenz der Ladungen von Vorder- und Rückseite die Elektretspannung, die somit ein Maß für den Ladungszustand des Elektreten ist.

Tab. 1: Elektrete für die Messung der Rn-222-Aktivitätskonzentration (2)

Typ	Material	Dicke	Anfangsspannung	Spannungsabfall bei Lagerung	Empfohlene Expositionsdauer
		in cm	in V	in V·Monat ⁻¹	
ST	Polytetrafluorethyle (PTFE)	0,152	700 – 750	4	2 – 7 Tage
LT	Tetrafluorethylen (FEP)	0,0127	700 – 750	1	1 – 12 Monate

Elektrete werden in der Regel aus dünnen Schichten dielektrischen Materials hergestellt (siehe Tabelle 1), indem auf die Oberseite in geeigneter Weise Ladungen aufgebracht oder im Material vorhandene Dipole ausgerichtet werden. Zur Ausrichtung der inneren Dipole des Elektreten und damit zum Aufbau der Elektretspannung werden die Elektrete erhitzt und einem elektrischen Hochspannungsfeld ausgesetzt. Nach dem schnellen Abkühlen haben sich durch den auch als Formierung bezeichneten Prozess die inneren Dipole ausgerichtet, und zusammen mit den zusätzlich im Material befindlichen Ladungszentren hat sich eine Elektretspannung aufgebaut (1).

Nach dem Einsetzen des Elektreten bildet sich in der Elektret-Ionisationskammer ein elektrisches Feld zwischen der positiv geladenen Elektretoberfläche, die in das Kammerinnere zeigt, und den mit der Rückseite des Elektreten verbundenen Innenwänden der Kammer. Rn-222 diffundiert durch das Filter aus der umgebenden Atmosphäre in das empfindliche Volumen der Probeentnahmeeinrichtung. Dort zerfallen das Rn-222 und seine kurzlebigen Zerfallsprodukte. Die dabei emittierten Alphateilchen bewegen sich infolge des elektrischen Feldes zu den Kammerwänden und ionisieren entlang ihres Weges Luftmoleküle. Durch diesen Prozess entstehen negative Ladungsträger, die sich unter dem Einfluss des elektrischen Feldes zu den Elektretoberflächen bewegen und die Ladungen des Elektreten kompensieren. Die Differenz der Elektretspannung vor und nach der Exposition ist dem Produkt aus der Rn-222-Aktivitätskonzentration und der Expositionsdauer proportional.

Elektretdetektoren können in Abhängigkeit von der Radonexposition und der dadurch verursachten Reduzierung der Elektretspannung mehrmals für Messungen eingesetzt werden. Die Regenerierung gebrauchter Elektretdetektoren wird in der Regel nicht durchgeführt.

3.2 Probenvorbereitung

Nach der Probeentnahme sind die Probeentnahmeeinrichtungen auf eventuelle Beschädigungen zu kontrollieren. Um unkontrolliertes Entladen der Elektrete zu vermeiden ist folgendes zu beachten (3):

- Die Elektretoberfläche darf nicht berührt werden.
- Die Elektrete sind vor jeglicher Verschmutzung zu schützen.
- Vor dem Einsatz der Elektrete müssen die Probeentnahmeverrichtungen von Staubpartikeln befreit werden.
- Staubpartikel dürfen nicht mit Lappen oder Pinsel entfernt, sondern müssen gegebenenfalls mit Druckluft oder Stickstoff abgeblasen werden.

- Der Verschlussdeckel der Elektrete muss sauber sein.

Die Elektrete sind staub- und radondicht zu lagern. Dabei ist das durch die Elektrete in ihrer Umgebung aufgebaute elektrische Feld durch geeignete Abschirmungen zu neutralisieren.

3.3 Radiochemische Trennung

Eine radiochemische Trennung ist bei diesem Verfahren nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

4.1 Prinzip des Messverfahrens

Infolge der Exposition durch Rn-222 verringert sich die Oberflächenladung des Elektreten. Zur Bestimmung der Ladungsdifferenz ist eine berührungslose Messung vor und nach der Exposition notwendig. Mit dem bei den Messungen angewandten Prinzip der kapazitiven Sonde wird die influenzierte Ladung in einer Metallsonde, die sich in geringem Abstand über dem Elektreten befindet, bestimmt (2). Durch Einbringen des Elektreten unter die vollständig entladene Metallsonde fließt aufgrund der Ladungsinfluenz ein Strom, der mit einem empfindlichen Elektrometer integriert werden kann. Die gemessene Ladung entspricht der Gesamtladung des Elektreten und ist proportional zur Elektretspannung.

Bei der Messung sind folgende Empfehlungen zu beachten (3):

- Es ist eine leicht zu säubernde, staubfreie Arbeitsunterlage zu benutzen.
- Bei Messung der Elektretspannung vor und nach der Exposition ist immer dasselbe Messgerät zu verwenden.
- Die Prüfung der Kalibrierung vor jedem Messeinsatz hat anhand von Referenzelektreten zu erfolgen. Die gemessenen Referenzspannungen sind zu protokollieren, da auch Referenzelektrete einem geringen Spannungsabfall unterliegen.
- Die Messung der Elektretspannung vor und nach der Exposition hat bei möglichst gleichen Umgebungsbedingungen zu erfolgen. Die empfohlene Temperatur beträgt 22 °C. Die empfohlene relative Luftfeuchtigkeit sollte bei etwa 65 % liegen. Die Umgebungstemperaturen sollten zum Zeitpunkt der Messungen nicht um mehr als 5 °C voneinander abweichen. Vor der Messung sollten sich die Elektrete und das Messgerät durch Akklimatisation an die Messraumbedingungen anpassen. Aus diesem Grund sollte eine Messung der Elektretspannung nicht im Freien vorgenommen werden.
- Bei der Messung ist darauf zu achten, dass der Elektret immer an der gleichen Stelle in der Aufnahmevorrichtung des Messgerätes positioniert wird. Bei Messung mit E-PermTM-Vorrichtungen sind die Elektrete so auszurichten, dass die Seriennummer der Elektrete immer parallel zur Beschriftung des Auslesegerätes steht. Während der Spannungsmessung sind die Elektrete leicht gegen den unteren Radius der Aufnahmevorrichtung zu drücken.
- Der Messvorgang am Auslesegerät ist durch gleichmäßiges und sorgsames Einschieben der Elektrete so oft zu wiederholen, bis drei aufeinanderfolgende Spannungswerte gemessen werden, die sich nicht um mehr als 1 V voneinander unterscheiden.

- Während der Messung sind die Elektrete nur so kurz wie möglich ungeschützt der Umgebungsatmosphäre auszusetzen. Damit werden Messfehler durch „Aufsammeln“ von Staubpartikeln oder Ladungsträgern aus der Umgebung vermieden.

4.2 Kalibrierung

Zur Kalibrierung werden die Probeentnahmeeinrichtungen während einer bestimmten Zeitdauer in einer Rn-222-Atmosphäre bekannter Radonkonzentration (z. B. Radon-222-Kalibrierkammer des Bundesamtes für Strahlenschutz) exponiert. Nach der Exposition werden die Elektrete aus den Messeinrichtungen entnommen und anschließend die Elektretspannung bestimmt. Der Kalibrierfaktor ist der Quotient aus der Spannungsdifferenz des Elektreten vor und nach der Exposition und der Rn-222-Exposition entsprechend Gleichung (1):

$$\kappa = \frac{U_a - U_e}{P_{\text{Rn}}} \cdot f(U) \quad (1)$$

In Gleichung (1) bedeuten:

κ Kalibrierfaktor in $\text{V} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$;

U_a Elektretspannung vor der Exposition in V;

U_e Elektretspannung nach der Exposition in V;

P_{Rn} Rn-222-Kalibrierexposition in $\text{Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3}$;

$f(U)$ Korrektionsfaktor für die Abhängigkeit des Kalibrierfaktors von der Elektretspannung.

Die Rn-222-Exposition ist das Integral der zeitlich veränderlichen Rn-222-Aktivitätskonzentration über die Expositionsdauer. Der Kalibrierfaktor ist von der Elektretspannung abhängig und steigt im Bereich von ca. 200 V bis etwa 700 V linear an. Deswegen ist ein zusätzlicher Korrektionsfaktor $f(U)$ für die Elektretspannung notwendig (2).

Änderungen der Elektretspannung können auch durch natürliche äußere Photonen- oder Neutronenstrahlung hervorgerufen werden. Infolge der hohen Rn-222-Expositionen bei der Kalibrierung ist dieser Effekt zu vernachlässigen.

Bei Verwendung von E-PermTM Probeentnahmeeinrichtungen werden vom Hersteller nicht nur formierte Elektrete angeboten, sondern auch Formeln zur Berechnung des Kalibrierfaktors angegeben (1). Dadurch ist eine Kalibrierung durch den Anwender nicht erforderlich. Die Standardmessunsicherheit des vom Hersteller angegebenen Kalibrierfaktors ist kleiner als 5 % und beinhaltet neben den Unsicherheiten der messtechnischen Bestimmung des Kalibrierfaktors auch alle Unsicherheiten durch Exemplarstreuungen der Probeentnahmeeinrichtungen und der Elektrete.

Anmerkung

Der Kalibrierfaktor κ ist nicht vergleichbar mit den im Kapitel III.2 dieser Messanleitungen aufgeführten Kalibrierfaktoren φ bzw. φ_A , sondern stellt einen speziell für dieses Verfahren angewandten Kalibrierfaktor dar.

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Die mittlere Rn-222-Aktivitätskonzentration wird aus der Differenz der Elektretspannungen vor und nach der Exposition gemäß Gleichung (2) berechnet:

$$\bar{c} = \frac{U_a - U_e}{\kappa \cdot t} - f_Y \cdot \dot{D}_Y \quad (2)$$

Neben den bereits definierten Symbolen bedeuten in Gleichung (2):

- \bar{c} Mittlere Rn-222-Aktivitätskonzentration während der Expositionsdauer in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
- t Expositionsdauer in h;
- f_Y Faktor zur Berechnung des zur Rn-222-Exposition äquivalenten Messeffektes infolge der natürlichen Photonen- und Neutronenkomponente in $\text{Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \mu\text{Gy}^{-1}$ (nach (2) beträgt der Wert $f_Y = 320 \text{ Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \mu\text{Gy}^{-1}$.);
- \dot{D}_Y Mittlere Energiedosisleistung der natürlichen Photonen- und Neutronenkomponente während der Expositionsdauer am Messort in $\mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$.

Bei Langzeitmessungen ist der vom Messort abhängige Einfluss durch äußere Photonen- oder Neutronenstrahlung auf den Messeffekt zu berücksichtigen und u. U. auch die lagerungsbedingte Abnahme der Elektretspannung zu korrigieren.

Die Standardabweichung $s(\bar{c})$ der mittleren Rn-222-Aktivitätskonzentration wird nach Gleichung (3) berechnet:

$$s(\bar{c}) = \sqrt{\left(\frac{U_a - U_e}{\kappa \cdot t}\right)^2 \cdot \left((0,05)^2 + \frac{2}{(U_a - U_e)^2}\right) + (0,1 \cdot f_Y \cdot \dot{D}_Y)^2} \quad (3)$$

Dabei wurde eine relative Standardmessunsicherheit des Kalibrierfaktors von 5 %, eine Messunsicherheit der Elektretspannungen von jeweils $\pm 1 \text{ V}$ und eine relative Standardmessunsicherheit der mittleren Dosisleistung durch natürliche Photonen- und Neutronenstrahlung von 10 % angenommen.

5.2 Rechenbeispiel

Bei der Durchführung der Messung mit einer Probeentnahmeeinrichtung E-Perm™ Typ S und mit einem Elektret vom Typ LT ergeben sich folgende Daten:

- $U_a = 497 \text{ V}$;
- $U_e = 307 \text{ V}$;
- $\kappa = 2,34 \cdot 10^{-4} \text{ V} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$;
- $t = 2200 \text{ h}$;
- $f_Y = 320 \text{ Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \mu\text{Gy}^{-1}$ (nach (1));
- $\dot{D}_Y = 0,07 \mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$.

Daraus folgt für die mittlere Rn-222-Aktivitätskonzentration nach Gleichung (2)

$$\bar{c} = \left(\frac{497 - 307}{2,34 \cdot 10^{-4} \cdot 2200} - 320 \cdot 0,07 \right) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 347 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Für die Standardabweichung folgt gemäß Gleichung (3):

$$s(\bar{c}) = \sqrt{\left(\frac{497 - 307}{2,34 \cdot 10^{-4} \cdot 2200} \right)^2 \cdot \left(0,0025 + \frac{2}{(497 - 307)^2} \right) + (0,1 \cdot 320 \cdot 0,07)^2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} =$$

$$= 19 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Alle Unsicherheiten infolge von bauartspezifischen Exemplarstreuungen der Probenentnahmevorrichtungen und durch die Verwendung und Auswertung der Elektrete werden in Gleichung (3) berücksichtigt. In dieser Fehlerbetrachtung sind jedoch keine Unsicherheiten enthalten, die sowohl durch extreme klimatische Einflüsse (z. B. Feuchtigkeit) als auch durch Staub und Schmutz oder unsachgemäße Handhabung der Elektrete hervorgerufen werden. In der Praxis liegt die Gesamtmessunsicherheit bei ca. 10 %.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Berechnung der Nachweisgrenze g stellt eine speziell für dieses Messverfahren vorgegebene Herangehensweise dar und unterscheidet sich mit den im Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen vorgegebenen Vorschlägen für die Berechnung der Nachweisgrenzen.

In der Praxis kann bei der Ermittlung der Nachweisgrenze auf die Empfehlung von (3) zurückgegriffen werden, wobei die Differenz der Elektretspannung vor und nach der Exposition mindestens $U_a - U_e = 20 \text{ V}$ betragen sollte. Damit kann die Nachweisgrenze nach Gleichung (4) berechnet werden:

$$g = \frac{20}{\kappa \cdot t} - f_V \cdot \dot{D}_V \quad (4)$$

Neben den bereits definierten Symbolen bedeuten:

g Nachweisgrenze der Rn-222-Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

6.2 Rechenbeispiel

Für das obige Beispiel mit einer Expositionsdauer von 2200 h beträgt die Nachweisgrenze der Rn-222-Aktivitätskonzentration bei einer Mindestdifferenz der Elektretspannung vor und nach der Exposition von $U_a - U_e = 20$ V:

$$g = \left(\frac{20}{2,34 \cdot 10^{-4} \cdot 2200} - 320 \cdot 0,07 \right) \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 16 \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Es sind keine Chemikalien erforderlich.

7.2 Geräte

- Probeentnahmeeinrichtung, z. B. der Firma Rad Elec Inc.;
- Formierte Elektrete, z. B. der Firma Rad Elec Inc.;
- Vorrichtung zur berührungslosen Messung der Elektretspannung.

Literatur

- (1) Kunzmann, S.: Radonmessung mit Elektret-Ionisationskammern. Dissertation, TU Dresden, Dresden, 1995
- (2) Kotrappa, P., Dempsey J.C., Ramsey, R.W., Stieff, L.R.: A practical E-PERMTM (Electret Passive Environmental Radon Monitor) system for indoor ²²²Rn Measurement. Health Physics 1990, Volume 58, Nr. 4, S. 461 – 467
- (3) Genitron Instruments: E-PERM-System - Präzise Messergebnisse erzielen Sie indem Sie folgende Hinweise beachten. Genitron Instruments GmbH, Frankfurt, 1995