



Bundesministerium
für Umwelt, Naturschutz
und Reaktorsicherheit

SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

TESTSYSTEM FÜR RADONRÜCKHALTENDE MASSNAHMEN

BMU - 2004-636



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

BMU – 2004-636

Testsystem für radonrückhaltende Maßnahmen

Prof. Dr. Hans-Christoph Mehner

Martin Grantz

IMPRESSUM

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht wurde von der Hochschule Zittau/Görlitz erstellt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

Herausgeber:

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
Arbeitsgruppe RS I 1
Postfach 12 06 29
53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2004

Testsystem für radonrückhaltende Maßnahmen

1 Radon

Radon ist ein chemisch inertes Edelgas, das als Tochternuklid des Radiums in den natürlichen Zerfallsreihen auftritt. Von relevanter Bedeutung sind zwei Nuklide:

- Rn-222 mit einer Halbwertszeit von 3,8 d aus der Uran-Reihe ausgehend vom U-238
- Rn-220 mit einer Halbwertszeit von 55,6 s aus der Thorium-Reihe ausgehend vom Th-232

Die Strahlenschutzproblematik dieser α -aktiven Nuklide liegt nicht so sehr im Radon, sondern in seinen Folgeprodukten, die vornehmlich α -aktive Schwermetalle sind. Flüchtiges, chemisch inertes Radon wird durch Atmung bzw. über die Haut inkorporiert und kann ebenso wieder abgegeben werden. Wenn jedoch einzelne Atome innerhalb des Körpers zerfallen, werden die entstehenden Schwermetalle plötzlich chemisch aktiv und immobil, d. h., daß die nachfolgenden α -Zerfälle alle in einem ortsfesten Gebiet geschehen und daher eine große Schädigung der näheren Umgebung hervorrufen. Aber nicht nur von den Zerfallsprodukten des inkorporierten Radons geht Gefahr aus, sondern auch von den Zerfallsprodukten des Radon, die in der Atemluft entstehen und dort entweder an Aerosolen gebunden werden (attached) oder noch frei sind (unattached), d.h. atomar in der Luft vorliegen. Diese bleiben beim Atmen in der Lunge nahezu ortsfest haften. Deshalb sollte die Radonkonzentration in neu zu errichtenden Wohnräumen 200 Bq m^{-3} nicht überschreiten.

Uranhaltige Minerale sind weit verbreitet. U.a. kommt Uran in merklicher Aktivitätskonzentration in Granit vor, der vornehmlich in Häusern älteren Datums zur Errichtung von Kellern und Untergeschossen verwendet wurde. Wegen seiner chemischen Inaktivität kann Radon nicht im Gestein gebunden werden. Es diffundiert aus dem geogenen Untergrund oder der Umgebungsluft von Bergwerken und Abraumhalden des Uranbergbaus in die Raumluft von anliegenden Häusern. So können sich Raumluftkonzentrationen von bis zu $500\,000 \text{ Bq m}^{-3}$ aufbauen, besonders wenn durch Wärmeisierungsmaßnahmen der Luftaustausch von Kellern mit der Außenluft unterbunden wird und die Keller auf Stollengängen von Bergwerken stehen, so daß durch Kaminwirkung konvektiver Transport von Radon in die Keller stattfindet.

Somit kommt der Sanierung von Altbauten in radonbelasteten Gebieten eine große Aufgabe zu. Die kostengünstigste Variante ist es, Wände und Böden von innen mit einer dünnen Folie zu überziehen, die "radondicht" ist. Da Radon chemisch inert ist, kann kein Material im wirklichen Sinn **radondicht** sein. Es kann aber so radonhemmend sein, daß das Radon solange zurückhalten wird, bis ein großer Teil zerfallen ist. Keller [1] hat daher eine Rückhaltung auf 5% ($\approx e^{-3}$) des Ausgangswertes unter Gleichgewichtsbedingungen als radondicht bezeichnet.

2 Die Meßapparatur

2.1 Anforderungen an die Meßapparatur

Es sollte eine Apparatur konstruiert werden, die Rückhalteeigenschaften von Folien und Rohren testen konnte. Die Konstruktion einer mobilen Diffusionapparatur sollte folgende Bedingungen erfüllen.

- Die Apparatur sollte für Folien mit 400 mm Durchmesser ausgelegt sein.
- Die Apparatur sollte mobil einsetzbar sein.
- Die Messung von Rohrmaterialien sollte möglich sein

2.2 Meßprinzip

Diffusionsmessungen werden grundsätzlich in der Art durchgeführt, daß ein Vorlagevolumen radonhaltig ist und man in einem Gegenvolumen die zeitliche Entwicklung der Radonkonzentration mißt. In Deutschland werden noch an der Univesitätsklinik Homburg/ Saar Radonmessungen durchgeführt. Das Kernstück dieser Apparatur besteht aus zwei Magdeburger Halbkugeln, die durch die/den zu untersuchende/n Folie/Baustoff getrennt sind. Eine dieser Kugeln ist direkt mit der Radonquelle verbunden. Die Apparatur liefert in der Größenordnung einen Meßwert pro Monat [1].

Das Meßprinzip dieser neukonstruierten Apparatur besteht in der Trennung von Quellen-, Meß- und Detektionsvolumen.

Dieses Verfahren hat mehrere Vorteile:

- Die Meßzeit für einen Meßpunkt beträgt deutlich weniger als 5 Halbwertzeitendes Nuklides Rn-222.
- Die Detektoren werden nicht zu stark belastet, da sie ohne Öffnen der Quelle von der Aktivität getrennt werden können.
- Der Einbau der Folien führt zu keinem Aktivitätsverlust im Quellenraum, so daß die zeitliche Dauer Einstellung eines stationären Zustandes zur Fortführung einer neuen Messung gering bleibt.
- Das aktive Volumen ist klein.
- Die radioaktive Belastung der Experimentatoren ist beim Wechseln der Folie gering.

Die Nachteile dieser Meßprinzipanordnung sind:

- Durch den Transport von Aktivität verringert sich die Aktivität in der Vorlagekammer.
- Der Quotient aus Aktivitäten der Diffusions- und Vorlagekammer ist nicht die gewünschte Meßgröße, sondern eine Zwischengröße.

2.3 Apparaturdaten

Die Meßapparatur zur Messung von Folien besteht aus zwei planparallelen Aluminiumblöcken in denen zwei deckungsgleiche Spiralen eingefräst wurden. Zwischen den Blöcken wird die zu überprüfende Folie eingespannt. Die Daten des Prototyps der Meßapparatur sind in [...] beigefügt.

Dimension eines Blockes:	500 × 700 × 40 mm ³	[300 × 400 × 30 mm ³]
Gewicht eines Blockes:	37,1 kg	[12,0 kg]
Dimension eines Spiralganges:	2,50 × 5,00 mm ²	
Dicke eines Steges:	1,00 mm	
Durchmesser der Spirale:	400 mm	[200 mm]
Volumen der Spirale:	261,80 ml	[65,45 ml]
Volumenfluß des Trägergases:	10 ml min ⁻¹	
Verweilzeit in der Spirale:	1570,8 s	[392,7 s]
Halbwertszeit Rn-222:	3,825 d	
Halbwertszeit Ar-41:	1,83 h	

Durch die Schwere der Apparatur ist die Mobilität eingeschränkt. Aus Stabilitätsgründen konnte jedoch die Tiefe der Blöcke nicht unter 40 mm reduziert werden.

Der schematische Aufbau der Versuchsanordnung ist in Abb. 1 im Anhang dargestellt. Abb. 2 zeigt ein Foto der verwendeten Meßapparatur.

Als Trägergas wird Argon verwendet. Mit Hilfe zweier Flow-Controller (MKS) werden die Gasflüsse für die Vorlagen- und die Diffusionskammer eingestellt. Der Einfachheit halber haben die Gasflüsse gleiche Werte.

Auf der Vorlagenseite wird der Gasstrom durch zwei 20 l Glaskolben geleitet. Im ersten dieser Kolben befindet sich etwa 1 kg uranhaltiges Erz in zerkleinertem Zustand. Dies ist die "Radonquelle". Dann wird das Gas durch eine Gaswaschflasche geleitet, die zur Trennung von Quellen- und Meßvolumen dient. Bei Austausch der Folien ist eine Rückdiffusion in das Quellenvolumen nicht möglich und somit zur Erreichung eines stationären Zustandes nur das Meßvolumen auszutauschen. Die Aktivität des Gasstroms kann nach passieren der Spirale bestimmt werden (Alphaguard Pro). Unter den gegebenen experimentellen Bedingungen wird eine stationäre Aktivität von 425 000 Bq m⁻³ erreicht. Vor dem Zugang zur Abgasleitung wird der Gasstrom durch eine zweite Waschflasche geleitet, um das System zu isolieren. Auf der Diffusionsseite sieht die Logistik des Gasstroms ähnlich aus, nur daß er nicht durch zwei Kolben geleitet wird. Um ein ähnliches Druckgefälle zu erhalten ist die erste Waschflasche vor der Zuleitung in die Spirale notwendig.

Abbildung 3 zeigt die Aktivität an Rn-222 in der Vorlagekammer, wenn die Quelle von einem Volumenfluß des Trägergases zum Transport von Aktivität aus dem Quellenraum in die Vorlagekammer durchströmt wird.

Das nach einem Folienwechsel auszutauschende Volumen beträgt etwa 800 ml (Alphaguard: 500 ml, Spirale: 262 ml, Zuleitungen: etwa 38 ml). Die Austauschzeit beträgt das drei- bis fünffache des Quotienten aus auszutauschendem Volumen und Volumenfluß.

Um zwei Messungen am Tag durchführen zu können, muß der stationäre Zustand nach höchstens 8 Stunden erreicht sein (☞ eine Messung über Nacht). Dies führt zu einem Volumensfluß von 10 ml min⁻¹.

Unter diesen Bedingungen beträgt die stationäre Aktivität für Rn-222 in der Vorlagekammer etwa 22,5 % der Gleichgewichtsaktivität in den Kolben. Dieser Faktor ist groß genug, um eine Trennung von Quellenraum und Vorlagekammer zu rechtfertigen.

3 Theorie

3.1 Lösung des einfachen Differentialgleichungssystems

Es sei folgendes einfaches Reaktionsschema in der Spirale gegeben:

	$\rightarrow \Psi$	A	Zugang von Rn in die Vorlagekammer durch Quelle
A	$\rightarrow \lambda$		radioaktiver Zerfall innerhalb der Vorlagekammer
A	$\rightarrow \zeta$		Abfluß von Aktivität aus der Vorlagekammer
A	$\rightarrow \vartheta$	B	Transfer in die Diffusionskammer
B	$\rightarrow \lambda$		radioaktiver Zerfall innerhalb der Diffusionskammer
B	$\rightarrow \zeta$		Abfluß von Aktivität aus der Diffusionskammer
B	$\rightarrow \vartheta$	A	Transfer in die Vorlagekammer

Dabei sei A Radon in der Vorlagekammer und B Radon in der Diffusionskammer. Ψ sei der Quellterm der Radonproduktion, λ die radioaktive Zerfallskonstante, ζ der Abflußterm und ϑ der Transferterm. ϑ wird bewußt nicht Diffusionsterm genannt, da wie in Kapitel 3.2 später angeführt wird, die Diffusion durch die Folie nur ein Teilschritt des Transfers darstellt. Für dieses gekoppelte Reaktionsschema erhält man folgendes Differentialgleichungssystem:

$$\begin{aligned}
 \dot{A} &= \Psi - (\lambda + \vartheta + \zeta)A + \vartheta B \\
 &= \Psi - (\lambda + \zeta)A - \vartheta[A - B] \\
 0 &= \ddot{A} + 2(\lambda + \vartheta + \zeta)\dot{A} - (\lambda + \zeta)(\lambda + 2\vartheta + \zeta)B - \dot{\Psi} - (\lambda + \vartheta + \zeta)\Psi \\
 \dot{B} &= -(\lambda + \vartheta + \zeta)B + \vartheta A \\
 &= -(\lambda + \zeta)B + \vartheta[A - B] \\
 0 &= \ddot{B} + 2(\lambda + \vartheta + \zeta)\dot{B} + (\lambda + \zeta)(\lambda + 2\vartheta + \zeta)B - \vartheta\Psi \\
 [\dot{A} - \dot{B}] &= \Psi - (\lambda + 2\vartheta + \zeta)[A - B]
 \end{aligned}
 \tag{1 - a, \dots, g}$$

Die Gleichung (1 - e) ist eine inhomogene, nichtgekoppelte lineare Differentialgleichung erster Ordnung, die mit Hilfe der Variation der Konstanten gelöst werden kann:

$$\begin{aligned}
 [A - B]_{(t)} &= \eta_1 e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} + e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} \int \Psi e^{(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} dt \\
 &\rightarrow \eta_1 e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} + \frac{\lambda + \zeta}{2\vartheta + \zeta} \frac{\Psi_0}{\lambda + \zeta} e^{-\lambda t} \quad \forall \Psi = \Psi_0 e^{-\lambda t} \\
 &\rightarrow \eta_1 e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} + \frac{\lambda + \zeta}{\lambda + 2\vartheta + \zeta} \frac{\Psi}{\lambda + \zeta} \quad \forall \dot{\Psi} \equiv 0
 \end{aligned}
 \tag{2 - a, \dots, c}$$

Die beiden Näherungslösungen gelten für die Spezialfälle einer axialen und einer radialen Verteilung eines Radionuklides im Kanal.

Die Bestimmung der Konstanten $\eta_{1,2,3}$ erfolgt durch folgende Randbedingungen:

- $B_{(t=0)} = 0$
- $A_{(t=0)} = A_0$
- Der zeitlich unbeschränkten Bedingung des stationären Zustandes

$$A_{0(t)} = [A_{(t)} + B_{(t)}]_{(t)} \quad \forall t, \text{ also auch für } t = 0$$

$A_{0(t=0)}$ ist die maximal mögliche Vorlagekonzentration am Eingang der Vorlagekammer oder Ausgangskonzentration. Die Ausgangskonzentration kann man als Funktion des Produktionsfaktors Ψ darstellen. Ψ ist aber nicht die Effusionsrate im Quellenraum, sondern die theoretische Effusion einer fiktiven Quelle am direkten Eingang zur Vorlagekammer und durch den Transportverlust vom Quellenraum bis hin zur Vorlagekammer bestimmt.

Durch Einsetzen dieser Lösung in die Gleichungen (1 - a, d) kann man dann diese berechnen. Die allgemeinen Lösungen und die Näherungslösungen sind:

$$\begin{aligned}
 B_{(t)} &= \eta_2 e^{-(\lambda+\zeta)t} + \vartheta e^{-(\lambda+\zeta)t} \int \left[\eta_1 e^{-2\vartheta t} + e^{-2\vartheta t} \int \Psi e^{+(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} dt \right] dt & (3 - a, \dots, d) \\
 &= \eta_2 e^{-(\lambda+\zeta)t} - \frac{\eta_1}{2} e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} \\
 &\quad + \vartheta e^{-(\lambda+\zeta)t} \int e^{-2\vartheta t} \int \Psi e^{+(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} dt^2 \\
 &\rightarrow \eta_2 e^{-(\lambda+\zeta)t} - \frac{\eta_1}{2} e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} + \frac{\vartheta}{2\vartheta+\zeta} \frac{\lambda+\zeta}{\zeta} \frac{\Psi_0}{\lambda+\zeta} e^{-\lambda t} \\
 &\rightarrow \eta_2 e^{-(\lambda+\zeta)t} - \frac{\eta_1}{2} e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} + \frac{\vartheta}{\lambda+2\vartheta+\zeta} \frac{\Psi}{\lambda+\zeta}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_{(t)} &= \int \dot{A} dt + \eta_3 = \int [\dot{A} - \dot{B}] dt + \int \dot{B} dt + \eta_3 & (4 - a, \dots, d) \\
 &= \eta_2 e^{-(\lambda+\zeta)t} + \frac{\eta_1}{2} e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} + \eta_3 \\
 &\quad + \left[e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} + \vartheta e^{-(\lambda+\zeta)t} \int dt e^{-2t} \right] \int dt \Psi e^{+(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} \\
 &\rightarrow \eta_2 e^{-(\lambda+\zeta)t} + \frac{\eta_1}{2} e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} + \eta_3 + \frac{\vartheta+\zeta}{2\vartheta+\zeta} \frac{\lambda+\zeta}{\zeta} \frac{\Psi_0}{\lambda+\zeta} e^{-\lambda t} \\
 &\rightarrow \eta_2 e^{-(\lambda+\zeta)t} + \frac{\eta_1}{2} e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} + \eta_3 + \frac{\lambda+\vartheta+\zeta}{\lambda+2\vartheta+\zeta} \frac{\Psi}{\lambda+\zeta}
 \end{aligned}$$

Die Bestimmung der Konstanten $\eta_{1,2,3}$ erfolgt durch die o. a. Randbedingungen für den Fall der stationären radialen Konzentration:

$$\text{mit: } A_{0_{t=0}} = \frac{\Psi}{\lambda+\zeta} \quad (5)$$

$$[A-B]_{t=0} = A_{0_{t=0}} = \eta_1 + \frac{\lambda+\zeta}{\lambda+2\vartheta+\zeta} \frac{\Psi}{\lambda+\zeta} \quad (6 - a, b)$$

$$\Rightarrow \eta_{1, \text{ radial}} = \frac{2\vartheta}{\lambda+2\vartheta+\zeta} A_{0_{t=0}}$$

$$B_{t=0} = 0 = \eta_2 - \frac{\eta_1}{2} + \frac{\vartheta}{(\lambda+2\vartheta+\zeta)} \frac{\Psi}{\lambda+\zeta} \quad (7 - a, \dots, d)$$

$$\Rightarrow \eta_{2, \text{ radial}} = 0$$

$$\begin{aligned}
 A_{t=0} = A_{0_{t=0}} &= \eta_3 + \frac{\eta_1}{2} + \left[1 - \frac{\vartheta}{(\lambda+2\vartheta+\zeta)} \right] \frac{\Psi}{\lambda+\zeta} \\
 &\equiv \eta_2 + \frac{\eta_1}{2} + \frac{\lambda+\vartheta+\zeta}{\lambda+2\vartheta+\zeta} \frac{\Psi}{\lambda+\zeta}
 \end{aligned}$$

$$\Rightarrow \eta_{2, \text{ radial}} = \eta_{3, \text{ radial}} = 0 \quad (8 - a, b)$$

$$A_{(t), \text{ radial}} = \left[1 - \frac{\vartheta}{\lambda+2\vartheta+\zeta} \left[1 - e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} \right] \right] A_{0_{t=0}}$$

$$B_{(t), \text{ radial}} = \frac{\vartheta}{\lambda+2\vartheta+\zeta} \left[1 - e^{-(\lambda+2\vartheta+\zeta)t} \right] A_{0_{t=0}}$$

Die Lösungen der axialen Gleichungen sind wie folgt:

$$\text{mit: } A_{0,t} = \frac{\Psi_0}{\lambda + \zeta} e^{-\lambda t} \quad (9)$$

$$[A-B]_{t=0} = A_{0,t=0} = \eta_1 + \frac{\lambda + \zeta}{2\vartheta + \zeta} \frac{\Psi_0}{\lambda + \zeta} \quad (10 - a, b)$$

$$\Rightarrow \eta_{1, axial} = \frac{2\vartheta - \lambda}{2\vartheta + \zeta} A_{0,t=0} \quad (11-a, \dots, d)$$

$$B_{t=0} = 0 = \eta_2 - \frac{\eta_1}{2} + \frac{\vartheta}{2\vartheta + \zeta} \frac{\lambda + \zeta}{\zeta} \frac{\Psi_0}{\lambda + \zeta}$$

$$\Rightarrow \eta_{2, axial} = -\frac{\lambda}{2\zeta} A_{0,t=0}$$

$$A_{t=0} = A_{0,t=0} = \eta_3 + \frac{\eta_1}{2} + \eta_2 + \frac{\vartheta + \zeta}{2\vartheta + \zeta} \frac{\lambda + \zeta}{\zeta} \frac{\Psi_0}{\lambda + \zeta} \quad (12 - a, b)$$

$$\Rightarrow \eta_{3, axial} = 0$$

$$A_{(t), axial} = \left[\frac{\vartheta + \zeta}{2\vartheta + \zeta} \frac{\lambda + \zeta}{\zeta} + \frac{2\vartheta - \lambda}{2(2\vartheta + \zeta)} e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} - \frac{\lambda}{2\zeta} e^{-(\lambda + \zeta)t} \right] A_{0,t=0}$$

$$B_{(t), axial} = \left[\frac{\vartheta}{2\vartheta + \zeta} \frac{\lambda + \zeta}{\zeta} - \frac{2\vartheta - \lambda}{2(2\vartheta + \zeta)} e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} - \frac{\lambda}{2\zeta} e^{-(\lambda + \zeta)t} \right] A_{0,t=0}$$

Im Folgen-

den soll die Richtigkeit der erstellten beiden Näherungsgleichungen verifiziert werden:

- Dazu wird zuerst der Fall der schnellen Diffusion [$\vartheta \gg \lambda + \zeta$] angenommen:

Es ergeben sich folgende Konzentrationen am Ausgang der Spiralen:

$$B_{(t), radial} \approx \frac{\vartheta}{2\vartheta} [1 - e^{-2\vartheta t}] A_{0,t=0} \rightarrow \frac{A_{0,t=0}}{2} \quad (13 - a, \dots, d)$$

$$A_{(t), radial} \approx \left[1 - \frac{\vartheta}{2\vartheta} [1 - e^{-2\vartheta t}] \right] A_{0,t=0} \rightarrow \frac{A_{0,t=0}}{2}$$

$$B_{(t), axial} \approx \left[\frac{\vartheta}{2\vartheta} \frac{\lambda + \zeta}{\zeta} - \frac{2\vartheta}{4\vartheta} e^{-2\vartheta t} - \frac{\lambda}{2\zeta} e^{-(\lambda + \zeta)t} \right] A_{0,t=0} \rightarrow \frac{\pm \lambda + \zeta}{\zeta} \frac{A_{0,t=0}}{2}$$

$$A_{(t), axial} \approx \left[\frac{\vartheta}{2\vartheta} \frac{\lambda + \zeta}{\zeta} + \frac{2\vartheta}{4\vartheta} e^{-2\vartheta t} - \frac{\lambda}{2\zeta} e^{-(\lambda + \zeta)t} \right] A_{0,t=0} \rightarrow \frac{\pm \lambda + \zeta}{\zeta} \frac{A_{0,t=0}}{2}$$

Diese Ergebnisse sind jedes für sich richtig, da die Folie keine Pumpe, sondern ein durchlässiger Körper ist und der Transfer in beide Richtungen erfolgt.

- Als zweites betrachtet man den Spezialfall $\vartheta \equiv 0$:

Indiesem Fall ist die maximale Vorlagekonzentration $A_{0(t)}$ die stationäre Konzentration innerhalb eines Teilvolumens der Vorlagekammer dessen Volumen nach einer Zeit t durchströmt wird.

$$A_{0,t} = \frac{\Psi}{\lambda + \zeta} \times e^{-\lambda t} = A_{0,t=0} \times e^{-\lambda t} \quad (14)$$

Dieses Gleichung ist nicht mit den radialen Lösungsgleichungen (8 a, b) konsistent. Der Fehler liegt in der dritten Bedingung: $A_{0(t)} = [A_{(t)} + B_{(t)}]_{(t)}$, die zur Herleitung der Lösungsgleichungen (8 a, b) auf die Randbedingung $A_{0(t=0)} = [A_{(t)} + B_{(t)}]_{(t=0)}$, reduziert wurden. Dies läßt auf eine schichtweise Interpretation der Differentialgleichungslösung (6 a) schließen.

$$\begin{aligned} \Rightarrow [A-B]_{t=0,t} &= \left[\eta_1 + \frac{\lambda + \zeta}{\lambda + 2\vartheta + \zeta} \frac{\Psi}{\lambda + \zeta} \right]_t = \left[\eta_1 + \frac{\lambda + \zeta}{\lambda + 2\vartheta + \zeta} \frac{\Psi_t}{\lambda + \zeta} \right] & (15 \text{ a, } \dots, \text{ c}) \\ A_{(t)} &= \left[1 - \frac{\vartheta}{\lambda + 2\vartheta + \zeta} \left[1 - e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} \right] \right] A_{0,t=0} \times e^{-\lambda t} \\ B_{(t)} &= \frac{\vartheta}{\lambda + 2\vartheta + \zeta} \left[1 - e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t} \right] A_{0,t=0} \times e^{-\lambda t} \end{aligned}$$

Vergleicht man Gleichungen (15 b,c) mit den Gleichungen (12- a,b), so kann man den Fehler durch Anwendung der schichtweise Iteration der radialen Näherung im Vergleich zur axialen Näherung bestimmen. Der Fehler wird klein, wenn einer von zwei Grenzfällen eintritt:

- $\zeta \gg \lambda$
- $\vartheta \gg \lambda, \zeta$

Von den o. a. Bedingungen ist die erste die wichtigere Bedingung, da u. U. über einen breiten Bereich von Größenordnungen die Geschwindigkeitskonstante des Transfers bestimmt werden soll. Solange diese Bedingung erfüllt ist, ist die wahre Verteilung der Konzentration durch die radiale oder axiale Näherung beschreibbar.

Unter den gegebenen experimentellen Umständen ist die Bedingung, daß die Geschwindigkeitskonstante des konvektiven Abflusses deutlich größer als die Zerfallskonstante des Radionuklides sei, immer erfüllt.

$$\begin{aligned} \lambda_{\text{Ar-40}} &= 1,05 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1} \\ \lambda_{\text{Rn-222}} &= 2,097 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1} \\ \zeta_{\text{kl. Spirale}} &= 2,55 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1} \\ \zeta_{\text{gr. Spirale}} &= 6,37 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1} \end{aligned}$$

Neben der Aktivität am Eingang der Vorlagekammer ist die stationäre Konzentration am Ende der Diffusionskammer die zweite experimentell zu ermittelnde Meßgröße $B_{(t_v, \text{exp})}$. t_v ist die Verweilzeit innerhalb der Vorlage-, Diffusionskammer.

Diese experimentelle Größe ist auch eine Funktion des Trägergasflusses, während die zu ermittelnde Grenzkonzentration $B_{(t, \text{max})}$ nur eine Funktion der Zerfallskonstante und der Diffusionskonstante ist. Man kann den Multiplikator betrechnen, mit dem man den experimentell bestimmten Konzentrationsquotienten $B_{(t, \text{exp})} A_{0(t=0)}^{-1}$ multiplizieren muß, um den Grenzkonzentrationsquotienten zu berechnen. Wenn dieser Grenzkonzentrationsquotient kleiner als 5 % ist, bezeichnet man das auf Diffusionseigenschaften geprüfte Material als dicht gegenüber der betrachteten Transferkomponente.

$$\begin{aligned} \frac{B_{(t_v, \text{exp})}}{A_{0,t=0}} &= \frac{\vartheta}{\lambda + 2\vartheta + \zeta} \left[1 - e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t_v} \right] e^{-\lambda t_v} & (16 - \text{a, } \dots, \text{ d}) \\ \frac{B_{(t, \text{max})}}{A_{0,t=0}} &= \frac{\vartheta}{\lambda + 2\vartheta} \leq e^{-3} \approx 5\% \\ \Rightarrow \vartheta &\leq \frac{\lambda e^{-3}}{1 - 2e^{-3}} \\ \frac{B_{(t, \text{max})}}{B_{(t_v, \text{exp})}} &= \left[1 + \frac{\zeta}{\lambda + 2\vartheta} \right] \frac{e^{-\lambda t_v}}{1 - e^{-(\lambda + 2\vartheta + \zeta)t_v}} \end{aligned}$$

Der Faktor zwischen gemessenem und maximalem Konzentrationsquotienten ist leider transzendent, d.h. unter den gegebenen Umständen nicht nach dem Transferterm ϑ auflösbar. Die Ermittlung der Ergebnisse muß daher graphisch erfolgen. Tabelle 1 im Anhang zeigt eine numerische Berechnung

von stationärem Konzentrationsquotienten in der Diffusionskammer und dem dazugehörigen Grenzkonzentrationsquotienten. Abbildung 4 folgt dieser Berechnung und zeigt eine Auftragung von Grenzkonzentrationsquotienten und experimentell bestimmbar stationären Konzentrationsquotienten in der Diffusionskammer. Sie dient damit der graphischen Auswertung.

Somit kann durch die Tabelle sowohl die Geschwindigkeitskonstante des Transfers als auch der Gleichgewichtskonzentrationsquotient bestimmt werden. Für Rn-222 muß die Geschwindigkeitskonstante der Diffusion nach Gleichung (16 c) kleiner als $2 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1} = 1,2 \times 10^{17} \text{ mol}^{-1} \text{ s}^{-1}$ sein, um einen Grenzkonzentrationsquotienten von weniger als 5 % zu bekommen. Hier wird nochmals deutlich, wie wichtig die Bedingung $\zeta \gg \lambda$ ist, weil die relevanten Größenordnungen für die Bestimmung von ϑ deutlich unter den Werten für die Zerfallskonstante liegen.

3.2 Bestimmung des geschwindigkeitsbestimmenden Schrittes

In Kapitel 4 wurde ein einfaches System von Elementarreaktionen zur Beschreibung des Transferprozesses aufgestellt. Dieses Reaktionsschema wird nun durch einige Elementarreaktionen erweitert, um den geschwindigkeitsbestimmenden Schritt des Transfers zu ermitteln.

	$\rightarrow \Psi$	A_g	Zugang von Rn in die Vorlagekammer durch Quelle
A_g	$\rightarrow \lambda$		radioaktiver Zerfall innerhalb der Vorlagekammer
A_g	$\rightarrow \zeta$		Abfluß von Aktivität aus der Vorlagekammer
A_g	$\rightarrow k_\infty$	A_{ads}	Adsorption an die Folie
A_{ads}	$\rightarrow k_d$	A_g	Desorption von der Folie
A_{ads}	$\rightarrow \xi$	A_{in}	Eintritt in die Folie
A_{in}	$\rightarrow \theta$	B_{cin}	Diffusion durch die Folie
B	$\rightarrow \lambda$		radioaktiver Zerfall innerhalb der Diffusionskammer
B	$\rightarrow \zeta$		Abfluß von Aktivität aus der Diffusionskammer
B_g	$\rightarrow k_\infty$	B_{ads}	Adsorption an die Folie
B_{ads}	$\rightarrow k_d$	B_g	Desorption von der Folie
B_{ads}	$\rightarrow \xi$	B_{in}	Eintritt in die Folie
B_{in}	$\rightarrow \theta$	A_{cin}	Diffusion durch die Folie

Das aus diesem System von Elementarreaktionen entstehende System von gekoppelten Differentialgleichungen ist nicht mehr analytisch lösbar. Man kann jedoch einige der Geschwindigkeitskonstanten aus der Theorie berechnen.

In der Theorie sind Geschwindigkeitskonstanten durch Arrheniusansätze zu beschreiben, für deren Frequenzfaktoren von Reaktionen erster und zweiter Ordnung [2, 3] folgende mikroskopische Ansätze gelten:

$$k = k_\infty \exp\left(-\frac{E}{RT}\right)$$

$$k_{\infty, 1.Ord.} = \frac{v_M}{\lambda_{mfW}} = \sqrt{1 + \frac{m_1}{m_2}} n \sigma v_M ; \text{ mit: } m_1 \leq m_2 \quad (10 \text{ a, } \dots, \text{ c})$$

$$k_{\infty, 2.Ord.} = \sigma v_M$$

Die Maxwellgeschwindigkeit beträgt für Rn-222 bei 20° C 167,2 m s⁻¹. Daher kann der Frequenzfaktor durch Teilchendichte n, Stoßquerschnitt σ und Molmassenverhältnis m_1, m_2 oder durch die mittlere freie Weglänge λ_{mfW} berechnet werden. Durch die mikroskopische Betrachtung ergibt sich, daß der Frequenzfaktor durchaus nicht temperaturunabhängig ist!

Diese Gleichungen sind für diese Arbeit fundamental. Eine Geschwindigkeitskonstante ist durch Bestimmung des Frequenzfaktors und der Aktivierungsenergie eindeutig definiert. Der geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist die Reaktion, deren Geschwindigkeitskonstante den kleinsten Wert annimmt. Dies ist gewöhnlich die Reaktion mit der höchsten Aktivierungsenergie. Im Folgenden sollen die Geschwindigkeitskonstanten der einzelnen Reaktionen berechnet werden.

3.2.1 Abfluß

Die Abflußkonstante ist ein Funktion des Volumenflusses Φ und des aktiven Volumens der Spirale.

$$\zeta = \frac{\Phi}{V_{Spirale}} \quad (11)$$

3.2.2 Zerfall

Die Geschwindigkeitskonstante ist die Zerfallskonstante der Nuklide, die durch die Halbwertzeit bestimmt wird

$$\lambda = \frac{\ln 2}{t_{\frac{1}{2}}} \quad (12)$$

3.2.3 Desorption

Für Edelgasatome läßt sich die Adsorptionsdauer τ_0 durch die Dipolauslenkung l_d darstellen, da der Atomkern des Edelgases bei Adsorption an einer "Wand" im Elektronenfeld oszilliert und durch Coulombkräfte zurückgedrängt wird. Die Dipolauslenkung entspricht dem Abstand von Ladungsschwerpunkt der Elektronen und dem Atomkern.

Der weiteren Darstellung der Desorption soll eine mikrokinetische Betrachtung Adsorption vorangestellt werden:

Die Adsorption (Physisorption) von Edelgasen an eine Wand erfolgt stoßkontrolliert, weil schon der erste Stoß zur Dipolbildung führt und somit nicht unterscheidbar ist, ob die rückschwingende Dipolbildung durch Stoß oder durch vorherige Schwingung erfolgte. Damit zählt jede Dipolschwingung zur Desorption. Dieses statement ist berechtigt, da sich bereits beim Stoß die Lage von Atomkern und Ladungsschwerpunkt der Elektronen verschieben. Die Dipolauslenkung kann somit aus der Desorptionsenergie von einem Dipol bekannter Stärke [$p_2 = q \epsilon r_{Atom}$] oder aus der Verdampfungsenthalpie der Edelgase bestimmt werden.

$$\begin{aligned} E_{vdW} &= - \frac{(p_1, p_2)}{4 \pi \epsilon_0 |r|^3} + \frac{3 (p_1, r)(p_2, r)}{4 \pi \epsilon_0 |r|^5} \\ &= \frac{Z e l_d |p_2|}{4 \pi \epsilon_0 (1 + \epsilon)^3 r_{Atom}^3} \times f_{(\cos \vartheta_{1,2})} \\ H_{V,(l)} &= \frac{(p,p)}{4 \pi \epsilon_0 |r|^3} = \frac{Z^2 e^2 l_d^2}{4 \pi \epsilon_0 2^3 r_{Atom}^3} \times f_{(\cos \vartheta)} \end{aligned} \quad (13 \text{ a, b, c})$$

$$\langle \vartheta \rangle = \frac{\int_0^{\frac{\pi}{2}} \cos \vartheta \, d\vartheta}{\frac{\pi}{2}} = \frac{2}{\pi}$$

$f_{\cos \vartheta}$ ist eine Funktion der Richtungskosini und ein statistischer Wert. Für ungerichtete Bewegungen kann man den mittleren Dipolwinkel $\langle \vartheta \rangle$ berechnen, wenn man bedenkt, daß der Ladungsschwerpunkt der Elektronenladung im Kreuzungspunkt der Dipolachsen liegt. Symmetrieüberlegungen schränken somit den Integrationsbereich auf das Intervall $[0 \dots \pi/2]$ ein.

Für Rn-222 ergeben sich somit für die mittlere Dipolauslenkung Werte von 0,52 pm, wenn man Gleichung (13 b) mit $f_{\cos \vartheta} \equiv \cos \langle \vartheta \rangle$ wählt. Dies ist etwa der 16-fache Kerndurchmesser oder 0,18 % des Hüllendurchmessers.

Die Dauer einer Adsorption folgt der Frenkelgleichung [2,3], die letztlich nur das Inverse des Arrheniusausdrucks einer Geschwindigkeitskonstanten ist.

$$\begin{aligned}
 t_{ads} &= \tau_0 \exp\left(+ \frac{E_{des}}{RT}\right) = \frac{2 \pi l_d}{v_M} \exp\left(+ \frac{E_{des}}{RT}\right) \\
 &= \sqrt{\frac{4 \pi^2 \epsilon_0 r_{Atom}^3 m_{Mol}}{z^2 e^2 N_L}} \times \sqrt{\frac{E_{des}}{RT}} \exp\left(+ \frac{E_{des}}{RT}\right) = \gamma_0 \times x e^x \quad (14)
 \end{aligned}$$

ϵ_0 ist die Dielektrizitätskonstante, z die Anzahl der Elementarladungen e , r_{Atom} der Radius und m_{Mol} die Molmasse des betrachteten Edelgases.

Die neue Konstante γ_0 hat für Rn-222 einen Wert von $6,5 \cdot 10^{-15}$ s. τ_0 nimmt am Siedepunkt der flüssigen Phase des Rn-222 den Wert $2,1 \times 10^{-14}$ s an. Für Argon betragen diese Werte $9,9 \times 10^{-15}$ s bzw. $2,9 \times 10^{-14}$ s. τ_0 ist somit etwas höher als in der Literatur als Frequenzfaktor der Desorption für Glas mit $1,7 \cdot 10^{-14}$ s angegeben ist [4].

Die Desorptionsenergie muß in gesonderten Experimenten bestimmt werden. Dazu bieten sich Experimente bei tiefen Temperaturen an, bei denen die Dauer einer Adsorption anwächst. Als Kältebäder kommen flüssige Gase wie Stickstoff (78 K), Argon (87 K), Sauerstoff (90 K) in Frage, weil hier bei unterschiedlichen Temperaturen, die dicht beieinander liegen, gemessen werden kann.

3.2.4 Adsorption

Nach den vorangehenden Betrachtungen von Adsorption und Desorption ist die Stoßzahl mit der Wand der Frequenzfaktor der Adsorptionsreaktion und die Aktivierungsenergie für die Adsorption per definitionem nicht existent. Dies führt zu einem sticking factor $\equiv 1$ und zu der Aussage, daß die Adsorption von Edelgasen an eine Wand stoßkontrolliert erfolgt. Diese Aussage ist extrem wichtig, da diese Reaktion ausnahmslos die einzige Art von Reaktion ist, die definitonsgemäß stoßkontrolliert erfolgt! Die Stoßzahlen mit der Wand berechnen sich nach zwei Gleichungen:

$$\begin{aligned}
 z_{cg} &= \frac{1}{4} n v_M \\
 z_{tac} &= \frac{\lambda_{mfW}}{r_{Rohr}} n v_M \quad (15 \text{ a. b})
 \end{aligned}$$

Für Nuklide deren Halbwertszeit im Verhältnis zur Verweilzeit in der Spirale klein ist, ergibt sich für die Stoßzahl mit der Wand die Gleichung (15 b) [5]. Die Stoßzahl für Rn-222 mit seiner großen Halbwertszeit berechnet sich jedoch nach Gleichung (15 a) [2,3].

3.2.5 Diffusion

Ein ähnlicher mikroskopischer Ansatz wie für die Frequenzfaktoren von Geschwindigkeitskonstanten liefert für den Diffusionskoeffizienten und die Diffusionszeit folgende Gleichungen [6]:

$$\begin{aligned}
 D &= \frac{1}{3} \lambda v_M \\
 t_{diff} &= \frac{d_{Folie}^2}{D} \quad (16 \text{ a. b})
 \end{aligned}$$

Die Diffusionszeit ergibt sich aus der Varianz der Aufenthaltswahrscheinlichkeit. Wenn die Varianz gleich den Gefäßdimensionen ist, ist der Diffusionsprozeß durch die Folie abgeschlossen. Die Berechnung der Diffusionszeit nach (16 b) ist nur für stoßkontrollierte Diffusion von Atomen durch Folien erlaubt.

Dies ist bei weichen, nicht vernetzten organischen Materialien gewährleistet, da in diesem Zustand die Makromoleküle als zweidimensionale Flüssigkeit gelten. Dies bedeutet, daß die funktionellen Gruppen quer zu ihrer Längsrichtung schwingen können.

3.2.6 Eintritt in die Folie

Diese Reaktion ist eine Konkurrenzreaktion der Desorption. Das bedeutet, daß sie denselben Frequenzfaktor aber eine andere Aktivierungsenergie besitzt. Die Energiedifferenz zur Desorption kann man durch den Einsatz unterschiedlicher Anzahl von Oberflächen bei konstanter Schichtdicke messen.

$$\begin{aligned}
 -RT \ln \eta_{\text{durch}} &= -RT \ln \left[\frac{\eta_{\text{durch}}^2 \epsilon \eta_{\text{diff}}}{\eta_{\text{durch}} \epsilon \eta_{\text{diff}}} \right] = -RT \ln \left[\frac{DW_{2 \times 1d}}{DW_{1 \times 2d}} \right] \\
 -RT \ln \eta_{\text{diff}} &= -RT \ln \left[\frac{\eta_{\text{durch}}^2 \epsilon \eta_{\text{diff}}^2}{\eta_{\text{durch}}^2 \epsilon \eta_{\text{diff}}} \right] = -RT \ln \left[\frac{DW_{1 \times 2d} DW_{1 \times 1d}}{DW_{2 \times 1d}} \right] \\
 -RT \ln \epsilon &= -RT \ln \left[\frac{\eta_{\text{durch}} \epsilon \eta_{\text{diff}}}{\eta_{\text{durch}} \eta_{\text{diff}}} \right] = -RT \ln \left[\frac{DW_{1 \times 2d}}{DW_{1 \times 1d}} \right]
 \end{aligned} \tag{17 a - c}$$

Gleichung (17) geht von folgenden drei Messungen aus:

- einfache Folie mit Schichtdicke d
- einfache Folie mit Schichtdicke 2d
- doppelte Folie mit jeweiliger Schichtdicke d

Die einfache dünne Folie besitzt folgende Eigenschaften:

- Oberflächeneintrittswahrscheinlichkeit η_{durch}
- Diffusionswahrscheinlichkeit η_{diff}

Die einfache dicke Folie besitzt im Vergleich zur dünnen einfachen Folie folgende Eigenschaften:

- Oberflächeneintrittswahrscheinlichkeit η_{durch}
- Diffusionswahrscheinlichkeit $\epsilon \eta_{\text{diff}}$ mit $\epsilon > 1$

Für die doppelgelegte dünne Folie ergibt sich dieselbe Diffusionswahrscheinlichkeit wie für die einfache dicke Folie, da dieselbe Dicke vorliegt. Bei bekannter Desorptionsenergie ist die Eintrittsenergie durch den Einsatz von Folien unterschiedlicher Dicke zu bestimmen.

3.2.7 Gruppeneffekte

Durch die Trennung von Quellen und Vorlagenraum läßt sich ohne Weiteres die Quelle in Aktivität und Art auswechseln. Man kann somit Radon durch Thoron (Rn-220) oder durch andere Edelgase ersetzen und dieselben Größen der Diffusion, des Eintritts oder der Desorption bestimmen. Dies wirft die Frage nach dem Warum auf, da ja Radon und vielleicht noch Thoron dosimetrisch interessant sind.

Gleichungen (13) und (14) sind Gruppengleichungen, die für die Edelgase als Gruppe gelten. Die Frage nach Gruppeneffekten ist somit wichtig, weil man sich ggf. ein günstiges Edelgas – z. B. nach einer praktischen Halbwertszeit – aussuchen kann, um dann die Ergebnisse auf andere Edelgase zu übertragen. Wenn diese Übertragungsfaktoren für die einzelnen Gleichungen identisch bzw. berechenbar sind, spricht man von Gruppeneffekten oder einer Extrapolation von Eigenschaften homologer Elemente. Somit werden Ergebnisse übertragbar und Eigenschaften einzelner für die Apparatur unpraktischer Edelgase oder sogar Nuklide vorhersagbar.

Die Überprüfung auf Gruppeneffekte ist somit ein elementarer Baustein im Verständnis der chemisch-physikalischen Durchdringung von Baumaterialien durch Edelgase.

4 Experimentelle Ergebnisse

Die Meßergebnisse und auf Bezug genommenen Daten werden in Tabellen mit fortlaufender Nummerierung im Anhang angeführt. In den einzelnen Teilkapitel wird auf diese Nummerierung hingewiesen. Werden jedoch einzelne Teile der Tabellen separat betrachtet und in Form kleinerer Tabellen sichtbar gemacht, erhalten diese die Nummerierung des Teilkapitels.

4.1 Bestimmung der Transfersgeschwindigkeitskonstante

Tabelle (1) im Anhang zeigt eine numerische Berechnung der gemessenen und Grenzaktivitäten für Rn-222 und Ar-41 sowie für Rn-220 für die kleine und große Apparatur für eine feste Über-alles-Diffusionskonstante ϑ . Mit Hilfe dieser Tabelle wurde durch halblogarithmische Interpolation ϑ für die experimentellen Werte bestimmt.

Die Messungen dieser Meßreihe, die mit Rn-222 an Kunststoffolien durchgeführt wurden, sind in Tabelle (2) im Anhang aufgeführt. Um weniger als 5% der Ausgangsaktivität an Rn-222 durchzulassen, sind Werte $\vartheta \leq 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ erforderlich. Keine der verwendeten Folien erreicht diese Rückhaltung. Polyurethanschaum (PU) kommt allerdings in greifbare Nähe der Radondichtheit.

Außerdem wurden die Aktivitätsquotienten älterer Arbeiten ([7], [8]) mit Hilfe dieser Tabelle ausgewertet.

Fazit: Die Theorie liefert für jede auszumessende Folie einen Wert für die Geschwindigkeitskonstante des Transfers, der durch halblogarithmische Interpolation der Werte der Tabelle (1) im Anhang bestimmt werden kann. Außerdem ist durch die Tabelle zu bestimmen ob eine Folien radondicht ist oder nicht.

4.2 Überprüfung der Apparaturen

Da nun zwei Apparaturen und zwei Radionuklide unterschiedlicher Größe und Halbwertszeit zur Verfügung standen konnte eine Überprüfung der Theorie erfolgen.

Tabelle (4.2-a) gibt die ermittelten Werte für eine PVC-Folie mit einer Dicke von 460 μm an. Dazu wurden Messungen dieser Arbeit mit Messungen älterer Arbeiten ([7],[8]) - s. Tabellen (3) und (4) im Anhang - verglichen.

	Rn-222 kleine Spirale [7]	Ar-41 kleine Spirale [8]	Rn-222 kleine Spirale	Rn-222 große Spirale
Aktivitätsquotient	0,00173	0,002959	0,004677	0,019423
Interpoalitionsfaktor	0,39792	0,218076	0,89682	0,0037712
ϑ [s^{-1}]	$6,59 \times 10^{-6}$	$1,163 \times 10^{-5}$	$1,862 \times 10^{-5}$	$2,007 \times 10^{-5}$

Tabelle 4.2-a: Experimentelle Ergebnisse für 460 μm starke PVC- Folie

Diese Meßergebnisse sind nicht leicht zu interpretieren:

☞ Die berechneten Werte für die Transfersgeschwindigkeitskonstante der Messungen für diese Arbeit zwischen der großen und der kleinen Spirale differieren leicht. Dies kann jedoch mit dem Meßfehler der Aktivitätsmessung erklärt werden, so daß die beiden Messungen gut übereinstimmen und einen Wert der Diffusionsgeschwindigkeitskonstanten von $\vartheta = 1,9 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ ergeben.

☞ Der Wert der Transfargeschwindigkeitskonstanten für Ar-41 in der kleinen Spirale ergibt sich aus dem Aktivitätsquotienten älterer Messungen zu $\vartheta = 1,2 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. Dieser Wert ist kleiner als der von Rn-222 der jetzigen Messungen. Dies wurde nicht erwartet und ist auch nicht sinnvoll, da Rn-222 im Vergleich zu Ar-41 nach der physikalischen Parametern in Tabelle (5) im Anhang sowohl einen größeren Radius besitzt als auch schwerer ist. Wenn man diese Argonwerte allerdings mit den Werten älterer Messungen, die zu einer Transfargeschwindigkeitskonstante von $\vartheta = 6,6 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ führen, vergleicht, ist ein sinnvoller Zusammenhang gegeben. Diese Effekte werden in den nächsten Kapiteln weiter diskutiert werden.

Fazit: Die Messungen mit Rn-222 zeigen, daß die Konstruktion der neuen Spirale zu guten, mit den Messungen der kleineren Versuchsanordnung konsistenten Ergebnissen führt.

4.3 Gruppeneffekte

In Tabelle (4.3-a) wurden die Transfargeschwindigkeitskonstanten einiger ausgewählter Materialien aufgelistet. Dazu wurde der Quotient ermittelt.

Material	Dicke [μm]	Ar	Rn	Quotient
PE	22,5	$7,22 \times 10^{-5}$	$7,30 \times 10^{-6}$	9,9
PP	30,1	$2,739 \times 10^{-5}$	$5,18 \times 10^{-5}$	0,53
Kautschuk	360	$6,42 \times 10^{-6}$	$4,48 \times 10^{-6}$	1,43
PVC	460	$1,163 \times 10^{-5}$	$6,59 \times 10^{-6}$	1,76
Zellophan	30,0	$3,36 \times 10^{-6}$	$6,99 \times 10^{-7}$	4,8
Al	51,6	$1,968 \times 10^{-6}$	$2,868 \times 10^{-7}$	6,9
PU	1000	$5,11 \times 10^{-6}$	$1,209 \times 10^{-7}$	42

Tabelle 4.3-a: Transfargeschwindigkeitskonstanten von Ar-41 und Rn-222 ausgewählter Materialien nach [7], [8]

Einige ausgewählte physikalische Eigenschaften wurden in Tabelle 4.3-b für die Nuklide Ar-41 und Rn-222 angeführt. Für einen kinetischen Effekt sind die Größen Nuklidmasse – als Maß für die Maxwellgeschwindigkeit – und Nuklidradius wichtig – für einen thermodynamischen Effekt jedoch die Verdampfungsenthalpie.

		Ar	Rn
m	[g mol^{-1}]	41	222
r_{Atom}	[pm]	171,3	207,1
H_V	[kJ mol^{-1}]	6,3	18,0

Tabelle 4.3-b: ausgewählte Eigenschaften von Ar-41 und Rn-222

Ein kinetischer Ansatz führt zu einem reziproken Quotienten der Massenwurzeln multipliziert mit einem Quadrat der Radien, was zu einem Wert von 1,59 führt. Ein thermodynamischer Ansatz führt bei Zimmertemperatur zu einem Wert von 118,0.

In Tabelle (4.3-a) treten drei Arten von Folien auf:

☞ dicke unpolare Folien

Die Thermodynamik spielt in diesem Fall eine untergeordnete Rolle und bestätigt somit den in den Gleichungen (16- a, b) dargestellten kinetischen Ansatz für die Diffusion durch die Folie. Als Beispiel sind PVC und Naturkautschuk zu nennen, deren Wert für den Quotienten der Transfergeschwindigkeitskonstanten um den Wert 1,6 liegt.

☞ dünne unpolare Folien:

Thermodynamische Effekte können aber auch nicht ganz ausgeschlossen werden, da der Quotient der Transfergeschwindigkeitskonstanten gegenüber den Vorhersagen etwas erhöht ist. Thermodynamische Effekte führen aber in die richtige Richtung und wirken dem kinetischen Ansatz nicht entgegen. Der Transfer beinhaltet bekanntlich die Diffusion durch die Folien, wie auch den Eintritt in die Folie. Die kinetischen Vorhersagen beziehen sich jedoch nur auf den Teilprozeß der Diffusion, der bei dünnen Folien natürlich im Vergleich zu anderen Teilreaktionen weniger stark ins Gewicht fällt und daher nicht den Wert des Quotienten dominieren kann.

Die Werte der Transfergeschwindigkeitskonstante von Ar-41 fällt für dünnes PP aus dem Rahmen. Da jedoch die Werte der Geschwindigkeitskonstanten von PP im Vergleich zum dünneren PE erklärbar sind, sollte eine Überprüfung der Argonmessung erwogen werden.

☞ dicke polare Folien:

Polyurethan fällt unter diese Gruppe. Der Quotient ist sehr deutlich gegen den kinetisch vorhergesagten Wert erhöht, so daß man davon ausgehen muß, daß thermodynamische Effekte den Ausschlag geben.

Die Folien aus unpolaren Bausteinen sind alle weich. Es scheint deshalb, als ob das Radon in der Folie "gelöst" wird. Es verhält sich so, als ob es sich in einer flüssigen Phase befindet. Deshalb kann man in diesem Fall von den Folien als einer zweidimensionalen Flüssigkeit sprechen. D.h. die Makromoleküle sind linear und die einzelnen funktionellen Gruppen bewegen sich zweidimensional frei, wobei die Lage des Makromoleküls nicht verändert wird. Außerdem sind die funktionellen Gruppen meist Alkyl-Reste, die unpolar sind und daher das unpolare Edelgas "lösen".

Polyurethan ist ein dreidimensional vernetzter Schaum, dessen funktionellen Gruppen polar sind. Hier kommen zwei Prinzipien zusammen:

- eine polare Umgebung und
- eine grobe Vernetzung, so daß dem Radon eine Vielzahl von Kanälen zur Verfügung steht.

In einem Vergleich versinnbildlicht, sind die weichen Kunststoffe wie ein Seetangfeld, durch das ein Fisch (Radon, Argon) hindurchschwimmt. Es bewegen sich der Fisch und der Seetang, so daß ein schneller Transport (hier Transfer) möglich wird. Der feste Polyurethanschaum entspricht in diesem Bild einem Korallenriff, daß zwar von vielen Ritzen, Gängen und Kanälen durchzogen ist, aber dem Fisch (Radon, Argon) je nach Größe nur wenige von diesen als Weg zur Verfügung stehen.

Fazit: Die Messungen für Ar-41 bedürfen einer weiteren Untersuchung, da sie ausschließlich auf Messungen mit dem Prototyp beruhen. Diese Untersuchungen konnten leider noch nicht stattfinden, da der ZLFR durch Einbau einer neuen Brandmelde- und Objektsicherungsanlage von Dezember 2001 bis September 2002 außer Betrieb und somit die Produktion von Ar-41 nicht möglich war.

4.4 Alterung von Folien

Wenn man die erhaltenen Daten für die Geschwindigkeitskonstante des Transfers von den Folien mit denen älterer Messungen vergleicht, kann man einen Faktor ermitteln, um den der Transport zugenommen hat. Dies kann für Alterungsprozesse stehen, da die verwendeten Folien vom Transport

in trockenem Edelgas in Transport in feuchtem Edelgas gebracht wurden. In Tabelle (4.4-a) wurden die Transfergeschwindigkeitskonstanten einiger Folien zusammengestellt. In der Zwischenzeit, die etwa 2 Jahre dauerte wurden die Folien in Sauerstoffatmosphäre, gewöhnlich in Dunkelheit, aber bei (unbeabsichtigt) erhöhter Luftfeuchte am ZLFR gelagert.

Material	Dicke [μm]	alt nach [7]	jetzt
PVC	460	$6,59 \times 10^{-6}$	$1,862 \times 10^{-5}$
PU	1000	$1,209 \times 10^{-7}$	$2,438 \times 10^{-6}$

Tabelle 4.4-a: Transfergeschwindigkeitskonstante für Rn-222

Der Faktor liegt zwischen 2,8 und 20,1. Dabei muß gesagt werden, daß PU sichtbare Zeichen von Alterungserscheinungen aufwies und dies erst auf das Problem der Alterung und dessen Auswirkung hinwies.

4.5 Bestimmung des geschwindigkeitsbestimmenden Schrittes

In Tabelle (5) im Anhang sind die Desorptionsenergien der Edelgase von unterschiedlichen Materialien aufgeführt [8]. Die Desorptionsenergien für Radon liegen leicht über denen der Verdampfungsenthalpie. Eichler gibt eine Desorptionsenergie von $18,9 \text{ kJ mol}^{-1}$ für Radon auf Eis an [9]. Die berechneten Werte sind daher glaubwürdig, weil sie nicht kleiner als die Verdampfungsenthalpie aber auch nicht viel größer als die vom Eis als Beispiel einer in sich polaren Substanz sein können.

In Tabelle (6) im Anhang wurden physikalische Größen der Edelgase zusammengestellt. Zur Bestimmung des geschwindigkeitsbestimmenden Schrittes werden die in Tabelle (7) angeführten Aufenthaltswahrscheinlichkeiten für Rn-222 mit Hilfe der Gleichungen im Abschnitt 3.2 und der physikalischen Größen der Tabelle (6) berechnet.

Beim PU ein deutlicher Anstieg der Differenz von Eintritts- und Desorptionsenergie zu sehen. In diesem Fall ist das Verhältnis von Eintritt in die Folie zu Desorption von der Folie etwa eins zu zwei. Für die anderen Folien nähert sich das Verhältnis einer Gleichverteilung von Eintritt und Desorption an.

Wenn man die Geschwindigkeitskonstanten für Abfluß und Zerfall vernachlässigt (Einstellung des stationären Zustandes), wird deutlich, daß der Eintritt in die Folie der geschwindigkeitsbestimmende Schritt der Über-Alles-Diffusion ist, da die Geschwindigkeitskonstante den geringsten Wert im Vergleich zu den anderen hat.

5 Diskussion

Zusammenfassend kann man folgendes feststellen:

- ☞ Die Apparatur liefert gute Ergebnisse zur Bestimmung der Klassifizierung als radondicht. Dazu genügt eine Folie pro zu untersuchendes Material.
- ☞ Der Transfer durch dünne Folien wird zunehmend durch thermodynamische Eigenschaften bzgl. des Gruppeneffektes beherrscht.
- ☞ Kunststoffolien lassen sich in zwei Kategorien teilen. Einmal Folien mit geringer Differenz zwischen Eintritt und Desorption und welche mit merklicher Energiedifferenz.
- ☞ Wenn man mehrere Folien mit einem bestimmten Dickeverhältnis verwendet, kann man zusätzlich den geschwindigkeitsbestimmenden Schritt erhalten. Diese Messung hängt nicht von der Apparatur, sondern von der Verfügbarkeit des Materials ab.
- ☞ Der geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist unter stationären Bedingungen der Eintritt in die Folien. Dies führt zur Aussage, daß es effektiver ist, eine Folie mit inneren Oberflächen zu konstruieren, als diese einfach nur dicker zu machen.
- ☞ Folien unterliegen einem noch näher zu untersuchendem Alterungsprozeß, der dazu führt, daß der Radontransfer durch die Folie zunimmt.

6 Ausblick

Die Anlage liefert für Rn-222 in praktischen Zeiten Ergebnisse. Jedoch ist der Gruppeneffekt noch nicht entgültig geklärt. Für die Edelgase Ar-41, Kr-85m, Xe-125 bzw. Xe-135m verspricht die einfache Aktivierung einer Gasmischung der Edelgase natürlicher Nuklidzusammensetzung detektierbarer Aktivitäten. Mit Hilfe dieser Nuklide können die Diffusionseigenschaften bestimmt und der Gruppeneffekt berechenbar gemacht werden. Dies wird durch die 2001 erfolgte Anschaffung eines low-level Gammameßplatzes unterstützt.

Eine Untersuchung des Alterungsprozesses von Folien sollte unbedingt erfolgen, da sonst Fehlinvestitionen in Folien getätigt werden, die dann nach einigen Jahren das Zertifikat "radondicht" verlieren könnten und deren Austausch zu ggf. erheblichen Kosten führen kann.

Tabellen

- T 01 Experimentelle und Grenzaktivitäten bei gegebener Über-Alles-Diffusionskonstante
- T 02 Meßergebnisse von Folienmessungen für Rn-222
- T 03 Auswertung der Meßergebnisse von Folienmessungen für Rn-222 nach [7]
- T 04 Auswertung der Meßergebnisse von Folienmessungen für Ar-41 nach [8]
- T 05 Desorptionsenergien von Edelgasen an unterschiedlichen Materialien
- T 06 physikalische Größen der Edelgase
- T 07 Berechnung der einzelnen Geschwindigkeitskonstanten

Abbildungen

- A 01 Schematische Anordnung der Meßapparatur
- A 02 Photographie der Meßapparatur
- A 03 Aktivität in der Vorlagekammer als Funktion des Volumenflusses durch die Quelle
- A 04 Gleichgewichtsaktivität als Funktion der stationären Aktivität

Literatur

- [1] G. Keller; *Radondiffusion*; 11. Radonstatusgespräch, Neuherberg, 18. - 19. 05.1998, Berichte der SSK, Heft 17, 25 - 30, 1998.
- [2] G. Wedler; *Lehrbuch der Physikalischen Chemie*; Verlag Chemie, Weinheim, 1982
- [3] W.J. Moore, *Physical Chemistry*, Chapters 4.12, 4.26; Longman, Burnt Mill, U.K., 1972
- [4] J. H de Boer; *The Dynamical Character of Adsorption*, 2nd ed.; Clarendon Press: Oxford, 1968; Kapitel III. 24, 25; X. 138, 143
- [5] M. Grantz; *Trace Amount Components in Laminar Gas Flow - Theoretical and Experimental Studies* ; 4th Workshop "Physics and Chemistry of the Heaviest Elements", Stenungssund, Sweden, June 5th - 8th 1997
- [6] E. Schmutzer, *Grundlagen der Theoretischen Physik*, Teil II, Kapitel 12.1; Deutscher Verlag der Wissenschaften Berlin, 1989
- [7] N. Georgi; *Experimentelle Untersuchungen zur Diffusion von Radon durch Baustofffolien* ; Diplomarbeit, BA Riesa, 13.09.2001
- [8] M. Grantz, H-Chr. Mehner; *Radondiffusionswiderstand von Baustoffen* ; Schlußbericht, AfuE-Projekt, FKZ 1704798; TIB, Hannover, subm. 03. April 2001
- [9] B. Eichler, H.P. Zimmermann, H.W. Gäggeler; *Adsorption of Radon on Ice Surfaces*; J. Phys. Chem. A **104**(14), 3126 - 3131, 2000

Im Rahmen dieses Projektes wurde eine Studienarbeit betreut:

C. George; *Untersuchung zu Eigenschaften und Verwendung geopolymerer Materialien (Polyorganosiloxane) für die Zwischenlagerung g radioaktiver Abfälle*; Baccelaursarbeit, Hochschule Zittau-Görlitz, 14.11.2002

ϑ [s ⁻¹]	Rn-222 kl. Spirale Diff/Vorl.	Rn-222 gr. Spirale Diff/Vorl.	Rn-220 kl. Spirale Diff/Vorl.	Rn-220 gr. Spirale Diff/Vorl.	Ar-41 kl. Spirale Diff/Vorl.	Ar-41 kl. Spirale Diff/Vorl.	Rn-222	Rn-220	Ar-41
0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1,00E-11	2,4815E-09	9,9157E-09	6,6425E-10	7,63165E-10	2,44E-09	9,27653E-09	4,76776E-06	8,02137E-10	9,5048E-08
2,00E-11	4,963E-09	1,9831E-08	1,3285E-09	1,52633E-09	4,87999E-09	1,85531E-08	9,53543E-06	1,60427E-09	1,90096E-07
5,00E-11	1,2407E-08	4,9578E-08	3,3212E-09	3,81583E-09	1,22000E-08	4,63826E-08	2,38379E-05	4,01068E-09	4,7524E-07
1,00E-10	2,4815E-08	9,9157E-08	6,6425E-09	7,63165E-09	2,44000E-08	9,27652E-08	4,76735E-05	8,02137E-09	9,50478E-07
2,00E-10	4,963E-08	1,9831E-07	1,3285E-08	1,52633E-08	4,87999E-08	1,85530E-07	9,5338E-05	1,60427E-08	1,90095E-06
5,00E-10	1,2407E-07	4,9578E-07	3,3212E-08	3,81583E-08	1,22000E-07	4,63826E-07	0,000238277	4,01068E-08	4,75235E-06
1,00E-09	2,4815E-07	9,9157E-07	6,6425E-08	7,63165E-08	2,43999E-07	9,27651E-07	0,000476327	8,02137E-08	9,50462E-06
2,00E-09	4,963E-07	1,9831E-06	1,3285E-07	1,52633E-07	4,87999E-07	1,85530E-06	0,000951746	1,60427E-07	1,90089E-05
5,00E-09	1,2407E-06	4,9578E-06	3,3212E-07	3,81582E-07	1,22000E-06	4,63823E-06	0,002372592	4,01068E-07	4,75195E-05
1,00E-08	2,4815E-06	9,9155E-06	6,6425E-07	7,63164E-07	2,43999E-06	9,27641E-06	0,004722773	8,02136E-07	9,50299E-05
2,00E-08	4,9629E-06	1,9831E-05	1,3285E-06	1,52633E-06	4,87996E-06	1,85526E-05	0,009357163	1,60427E-06	0,000190024
5,00E-08	1,2407E-05	4,9575E-05	3,3212E-06	3,8158E-06	1,21998E-05	4,63797E-05	0,022754164	4,01065E-06	0,000474789
1,00E-07	2,48140E-05	9,91438E-05	6,6424E-06	7,63154E-06	2,43992E-05	9,27535E-05	0,043527466	8,02124E-06	0,000948677
2,00E-07	4,9626E-05	0,00019826	1,3285E-05	1,52628E-05	4,87967E-05	0,000185483	0,080083287	1,60422E-05	0,00189376
5,00E-07	0,00012405	0,00049546	3,321E-05	3,81554E-05	0,000121980	0,000463531	0,161425712	4,01036E-05	0,004707655
1,00E-06	0,00024807	0,00099027	6,6416E-05	7,63049E-05	0,000243920	0,000926473	0,244057207	8,02008E-05	0,009327488
2,00E-06	0,00049597	0,00197794	0,00013281	0,000152586	0,000487681	0,001850592	0,328008659	0,000160376	0,018313341
5,00E-06	0,00123871	0,00492546	0,00033191	0,000381292	0,001218013	0,004608891	0,413311951	0,000400747	0,043399011
1,00E-05	0,00247335	0,00978677	0,00066338	0,000762002	0,002432066	0,009159589	0,452541928	0,000800852	0,079865825
2,00E-05	0,00493053	0,0193206	0,00132502	0,001521686	0,004848348	0,018089639	0,475088723	0,001599143	0,137731561
5,00E-05	0,01220616	0,04647461	0,00329962	0,003786926	0,012003611	0,043565257	0,489728436	0,003978769	0,243652843
1,00E-04	0,02401931	0,08729813	0,00655653	0,007516921	0,023623679	0,081992689	0,494810918	0,007894716	0,327643262
2,00E-04	0,046521200	0,154880826	0,0129454	0,014811172	0,045766319	0,146017808	0,497391925	0,015544001	0,395874983
5,00E-04	0,10592998	0,28185989	0,03116627	0,035452645	0,104287446	0,268446166	0,498953495	0,037128621	0,452402711
1,00E-03	0,18300416	0,37296716	0,05870423	0,066210608	0,180377282	0,359805054	0,499476199	0,069124265	0,475011994
0,002	0,28207312	0,43085844	0,10513003	0,116936361	0,278612228	0,421532474	0,499737962	0,121457244	0,487185796
0,005	0,39556586	0,46998144	0,19988378	0,216419112	0,392455541	0,465470014	0,499895152	0,222551599	0,494794269
0,01	0,44342368	0,48452623	0,28560643	0,302084504	0,44140767	0,482117537	0,49994757	0,308007897	0,497383514
0,02	0,47005094	0,49214152	0,36354924	0,376624286	0,468914571	0,490895966	0,499973784	0,381194167	0,498688325
0,05	0,4875738	0,49682668	0,43473278	0,442073672	0,487084041	0,496318163	0,499989513	0,444576039	0,499474503
0,1	0,49370873	0,49840829	0,46508777	0,469255946	0,493457518	0,498152278	0,499994757	0,470661991	0,499737113
0,2	0,49683445	0,49920288	0,48191241	0,484140384	0,496707216	0,499074429	0,499997378	0,484887629	0,499868522
0,5	0,49872895	0,49968085	0,49260444	0,493533078	0,498677661	0,49962936	0,499998951	0,493843402	0,499947401
1	0,49936367	0,49984037	0,49627467	0,496745492	0,499337955	0,499814611	0,499999476	0,496902632	0,499973699
2	0,49968163	0,49992017	0,49813037	0,498367433	0,499668758	0,499907288	0,499999738	0,498446504	0,499986849
5	0,4998726	0,49996807	0,49925047	0,499345691	0,499867451	0,499962911	0,499999895	0,499377441	0,49999474
10	0,49993629	0,49998403	0,49962495	0,499672631	0,499933717	0,499981455	0,499999948	0,499688527	0,49999737
20	0,49996814	0,49999202	0,49981241	0,499836262	0,499966856	0,499990727	0,499999974	0,499844215	0,499998685
50	0,49998726	0,49999681	0,49992495	0,499934492	0,499986742	0,499996291	0,499999999	0,499937674	0,499999474

Tabelle 1: Experimentelle und Grenzaktivitäten bei gegebener Über-Alles-Diffusionskonstante
Fett gedruckt sind die Grenzaktivitäten, bei denen Radodichtheit nach Keller vorliegt.

					steady state [Bq m ⁻³]	Fehler [Bq m ⁻³]	A _{exp} / A ₀	Interpolationsf.	̑ [s ⁻¹]	E _{durch} - E _{des} [kJ/ mol]
Vorlageaktivität					434020	15000	1,0			
Folie	Material	Farbe	Dicke [mm]	Zahl Folien						
T-RTV664-15 kl. Spirale	Silikon	hellblau	1,67	1	144930	9000	0,3339	0,456871373	3,040E-03	0,1427
		hellblau	3,34	2	84930	5200	0,1957	0,127972138	1,093E-03	
		hellblau	3,34	1	89930	5000	0,2072	0,24425686	1,184E-03	
RT646 kl. Spirale RT646-2	Silikon	weißgrau	1,67	1	154930	9000	0,3570	0,659883591	3,661E-03	0,4190
		weißgrau	3,34	2	92930	5000	0,2141	0,314027693	1,243E-03	
		weißgrau	3,34	1	109930	5200	0,2533	0,709395747	1,635E-03	
Heissner Teichfolie kl. Spirale	PVC	schwarz	0,460	1	2030	200	0,004677	0,896903693	1,862E-05	0,1576
			0,920	2	920	200	0,002120	0,713574795	8,199E-06	
			0,930	1	980	150	0,002258	0,825544663	8,861E-06	
gr. Spirale			0,460	1	8430	365	0,019423	0,003773589	2,007E-05	
jafo-gr. Spirale	PE-recy.	schwarz	0,5	1	3130	500	0,007212	0,470282544	6,927E-06	
SIG; kl. Spirale	PU		1,0	1	285		0,000657	0,216336494	2,438E-06	1,9285
			2,0	2	60	40	0,000138	0,114437005	5,413E-07	
			2,0	1	130	60	0,000300	0,207565016	1,155E-06	

Tabelle 2: Meßergebnisse unterschiedlicher Folien mit Rn-222

Folie	Material	Farbe	Dicke [mm]	Zahl Folien	A_exp/ A_0	Interpolationsf.	ϑ [s ⁻¹]	E_durch - E_des [kJ/ mol]
Heissner Teichfolie	PVC	schwarz	0,460	1	1,73E-03	0,397921661	6,588E-06	2,4502
			0,920	2	9,81E-04	0,653027977	3,638E-06	
			0,930	1	2,62E-03	0,059682237	1,042E-05	
SIG, Polybrid	PU	gelb	1,0	1	3,16E-05	0,273496695	1,209E-07	3,1582
			2,0	2	1,37E-05	0,104215362	5,375E-08	
			2,0	1	4,86E-05	0,958649041	1,943E-07	
	Kautschuk	rot	0,360	1	1,15E-03	0,880563858	4,482E-06	
	PP		0,0300	1	1,28E-02	0,050269403	5,177E-05	
	Cellophan		0,0300	1	1,84E-04	0,483389776	6,990E-07	
Al		0,0516	1	7,89E-05	0,393340858	2,868E-07		
Petra FO 70	PE		0,0225	1	1,48E-01	0,545838048	7,299E-04	
jafo Gitternetzfolie	PE		0,200	1	2,55E-03	0,031194296	1,022E-05	
Dampfsperrfolie	PE		0,200	1	4,91E-03	0,991644894	1,988E-05	

Tabelle 3: Auswertung der Meßergebnisse unterschiedlicher Folien mit Rn-222 nach [7]

Folie	Material	Dicke [μm]	Zahl Folien	Fluß [ml/ min]	Vorlagek. [Bq m ⁻³]	Fehler [Bq m ⁻³]	Diffusionk. [Bq m ⁻³]	Fehler [Bq m ⁻³]	eta-Det	A_exp/ A_0	ϑ [s ⁻¹]	E_durch - E_des [kJ/ mol]
FO-70	PE	22,5	1	30	9436,6	147,83	171	36,30	1,001900	0,01816	7,217E-05	
				10	10242,2	212,63	182	21,46	1,001900	0,01780	7,067E-05	
				10	10160,9	189,86	134	26,96	1,001900	0,01321	5,374E-05	
Papier		97,5	1	30	2522,8	72,07	5618	91,07	1,001900	2,23110		
				1000	189,3	35,92			1,001900			
				1000	278,0	29,55			1,001900			
				10	1631,1	37,87	3501	65,15	1,001900	2,15043		
				10	9991,3	120,74	18183	162,74	1,001900	1,82335		
	Gummi	360	1	10	48449,1	405,6	80	18,02	1,001900	0,00165	6,415E-06	
Zellophan		31,25	1	10	59973,0	464,86	54	17,91	1,001900	0,00090	3,364E-06	
Dampfsrerrfolie	PE	200	1	10	44293,4	1251,10	118	15,58	1,001900	0,00267	1,070E-05	
Gitterfolie	PE	300	1		1				1,001900	0,00000		
	PP	30,1	1	10	46365,9	340,75	338	24,66	1,001900	0,00730	2,739E-05	
	Al	51,6	1	10	45733,2	503,26	22	10,21	1,001900	0,00048	1,968E-06	
Heissner Teichfolie	PVC	460	1	10	48078,8	338,2	142	34,13	1,001900	0,00296	1,163E-05	
		920	2	10	48275,1	294,46	23	9,45	1,001900	0,00048	1,942E-06	2,2890
		935	1	10	48624,8	334,01	58	17,79	1,001900	0,00120	1,253E-05	
Polybrid, SIG Dresden	PU	1,0	1	10	37391,11	329,07	45	17,33	1,043010	0,00126	5,107E-06	
		1,0	1	10	60105,42	489,68	95	34,28	1,043010	0,00165	6,393E-06	

Tabelle 4: Auswertung der Meßergebnisse unterschiedlicher Folien mit Ar-41 nach [8]

		He	Ne	Ar	Kr	Xe	Rn
Atomdurchmesser	pm	337,3	286,9	342,6	379,8	374,5	414,2
Verdampfungsenthalpie	kJ/ mol	0,090	1,8	6,3	9,7	13,7	18,0
PVC:							
Dauer einer Adsorption (78 K)	s				0,23795	8,24397	
Dauer einer Adsorption (87 K)	s				0,04994	6,43558	
Desorptionsenergie	kJ/ mol	1,83	10,44	14,97	16,35	18,78	19,03
Quarzglas							
Dauer einer Adsorption (78 K)	s				0,09212	2,00793	
Dauer einer Adsorption (87 K)	s				0,02468	1,70684	
Desorptionsenergie	kJ/ mol	1,75	9,99	14,32	15,75	17,84	18,21
PE							
Dauer einer Adsorption (78 K)	s						
Dauer einer Adsorption (87 K)	s						
Desorptionsenergie	kJ/ mol	1,83	10,45	14,98	15,92	19,32	19,04
Teflon							
Dauer einer Adsorption (78 K)	s						
Dauer einer Adsorption (87 K)	s						
Desorptionsenergie	kJ/ mol	1,90	10,83	15,53	16,51	20,03	19,74
Kupfer							
Dauer einer Adsorption (78 K)	s						
Dauer einer Adsorption (87 K)	s						
Desorptionsenergie	kJ/ mol	1,74	9,92	14,22	16,22	17,01	18,08
Silikon							
Dauer einer Adsorption (78 K)	s						
Dauer einer Adsorption (87 K)	s						
Desorptionsenergie	kJ/ mol	1,84	10,50	15,05	16,00	19,42	19,13

Tabelle 5: Bestimmung der Desorptionsenergien unterschiedlicher Materialien nach [8]

physikalische Größe	Einheit	He	Ne	Ar	Kr	Xe	Rn
Ordnungszahl		2	10	18	36	54	86
Molmasse	g/ mol	4,002602	20,1797	39,948	83,80	131,29	222
Verdampfungsenthalpie	J/ mol	90	1800	6300	9700	13800	18000
Schmelzpunkt	K	0,95	24,48	83,95	116,55	161,25	202,15
Siedepunkt	K	4,25	27,25	87,45	120,85	166,05	211,35
flüssige Phase: Dichte am Siedepunkt	g/ ml	0,147	1,204	1,4	2,155	3,52	4,4
Dichte der festen Phase	g/ ml			1,65			4,0
Durchmesser nach Moore 4.26 ber. aus:							
Gasviskosität	pm	200	234	286	318	-	-
v. d. Waals- Gleichung: Faktor "b"	pm	248	266	286	314	-	-
molecular refraction	pm	148	-	296	334	-	-
dichteste Kugelpackung	pm	-	320	383	402	-	-
maximal Dichte	g/ ml	0,173	1,42	1,65	2,54	4,15	5,19
eigene Rechnung: Würfel, Kantenlänge	pm	337,3	286,9	342,6	379,8	374,5	414,2
eigene Rechnung: fcc, Kantenlänge	pm	238,5	202,9	242,2	268,6	264,8	292,9
Oberfläche aus fcc	nm ²	0,17866	0,12928	0,18433	0,22657	0,22036	0,26953
Maxwellgeschwindigkeit Zimmertemperatur	m/ s	1245,23	554,58	394,16	272,14	217,42	167,20
Kernradius	fm	2,032	3,485	4,376	5,601	6,506	7,750
Dipolauslenkung $I_{(H_v)}$	m	1,168E-12	8,194E-13	1,111E-12	8,048E-13	6,267E-13	5,227E-13
Adsorptionskonstante γ_0	s	3,068E-14	1,081E-14	1,103E-14	9,321E-15	7,617E-15	7,234E-15
Adsorptionszeit τ_0 am Siedepkt	s	4,897E-14	3,047E-14	3,245E-14	2,896E-14	2,408E-14	2,315E-14

Tabelle 6: Physikalische Eigenschaften der Edelgase

		kleine Spirale	große Spirale
Teilchendichte Ar (Trägergas)	[cm ⁻³]	2,54259E+19	2,54259E+19
Zerfall Rn-222:			
Geschwindigkeitskonstante	[s ⁻¹]	2,0974E-06	2,0974E-06
exp. Vorlageaktivität	[Bq m ⁻³]	425000	425000
Teilchendichte Rn (Vorlage)	[cm ⁻³]	202632,3	202632,3
Abfluß:			
Spiralvolumen	[ml]	65,450	261,799
Volumenfluß	[ml min ⁻¹]	10	10
Geschwindigkeitskonstante	[s ⁻¹]	0,002546479	0,00063662
Adsorption:			
Maxwellgeschwindigkeit Zimmertemperatur	[m/ s]	167,20	167,20
Stoßzahldichte	[cm ⁻² s ⁻¹]	8,470E+08	8,470E+08
aktive Fläche	[cm ²]	261,80	1047,20
Geschwindigkeitskonstante	[s ⁻¹]	2,217E+11	8,870E+11
Desorption:			
Verdampfungsenthalpie	[kJ/ mol]	18,0	18,0
mittlere Desorptionsenergie	[kJ/ mol]	19,24	19,24
Adsorptionskonstante γ_0	[s]	6,487E-15	6,487E-15
Geschwindigkeitskonstante	[s ⁻¹]	2,037E+10	2,037E+10
Eintritt			
mittlere Desorptionsenergie	[kJ/ mol]	19,24	19,24
Adsorptionskonstante γ_0	[s]	6,487E-15	6,487E-15
mittl. Eintrittsenergie	[kJ/ mol]	0,15	0,15
Geschwindigkeitskonstante für PVC	[s ⁻¹]	1,908E+10	1,908E+10
max. Eintrittsenergie		1,98	1,98
Geschwindigkeitskonstante für PU		8,606E+09	8,606E+09
Diffusion			
Atomdurchmesser	[pm]	292,9	292,9
Spiralvolumen	[ml]	65,450	261,799
mittlere freie Weglänge: Gasphase	[cm]	2,681E-05	2,681E-05
mittlere freie Weglänge: PVC	[pm]	322,6	322,6
mittlere freie Weglänge: PU	[pm]	3429,0	3429,0
Diffusionskoeffizient: PVC	[cm ² s ⁻¹]	1,798E-04	1,798E-04
Geschwindigkeitskonstante	[s ⁻¹]	5,184E+11	5,184E+11

Tabelle 7: Berechnung der einzelnen Geschwindigkeitskonstanten

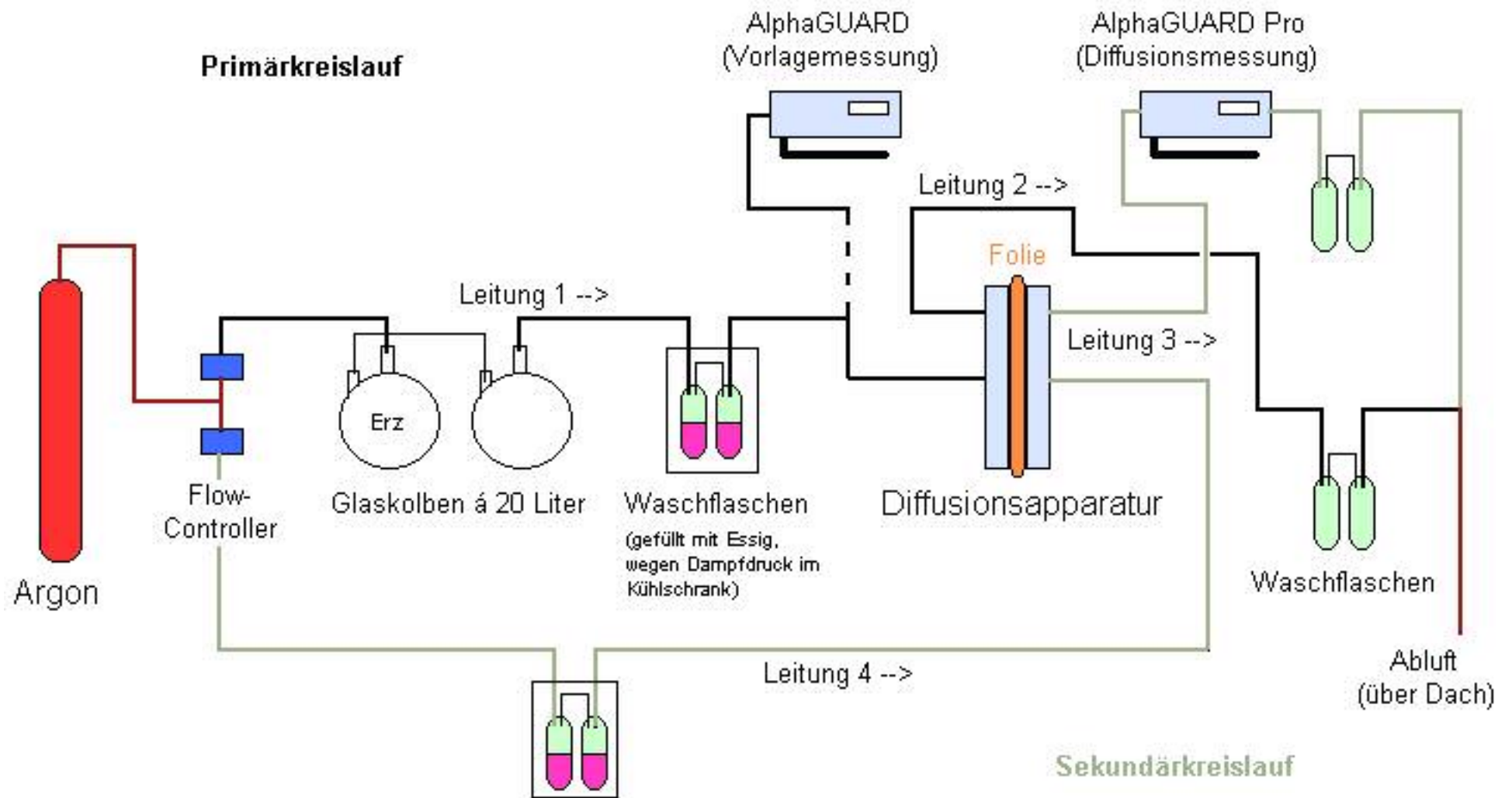


Abbildung 01: Schematischer Aufbau der Meßapparatur

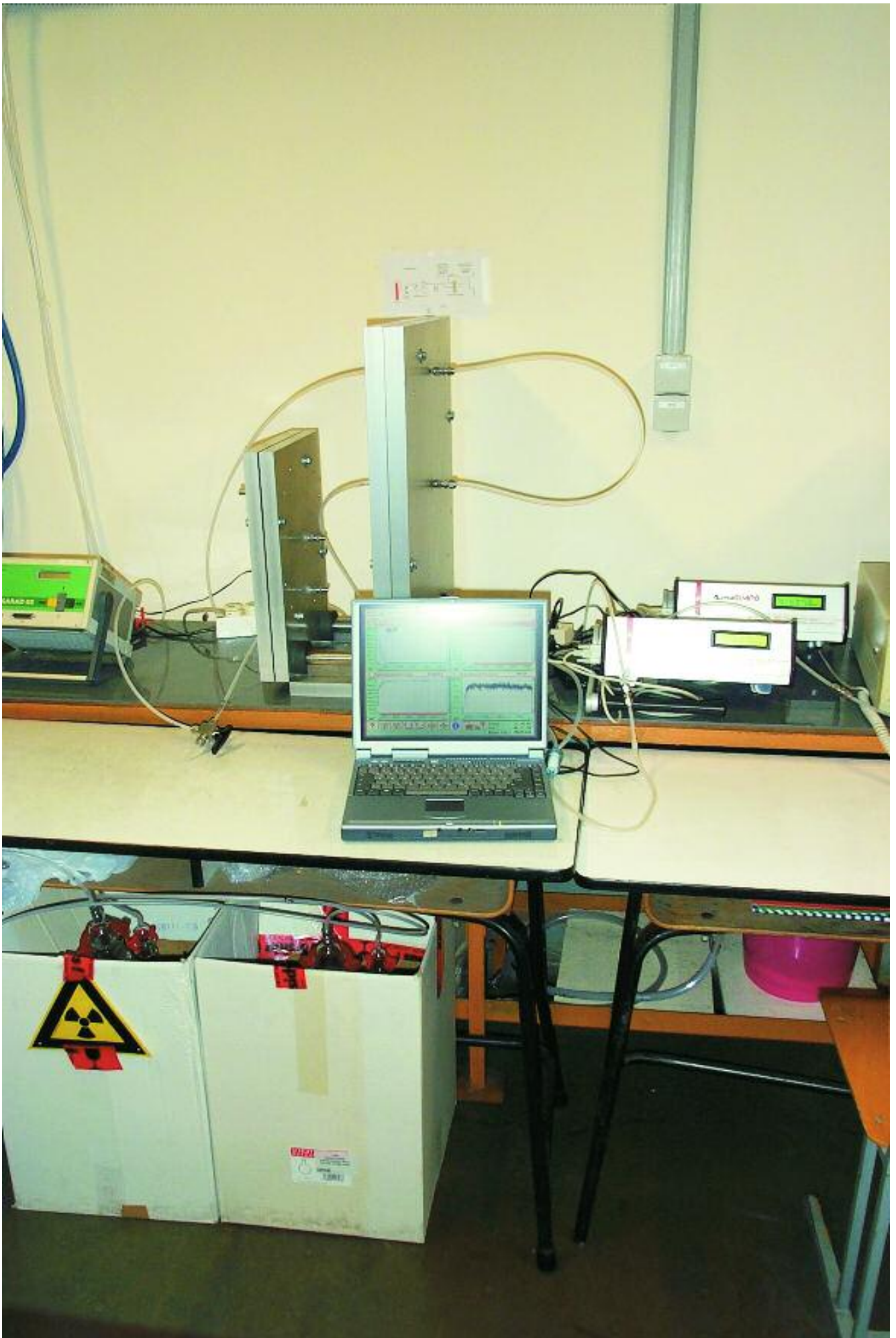


Abbildung 02: Photographie der Meßapparatur

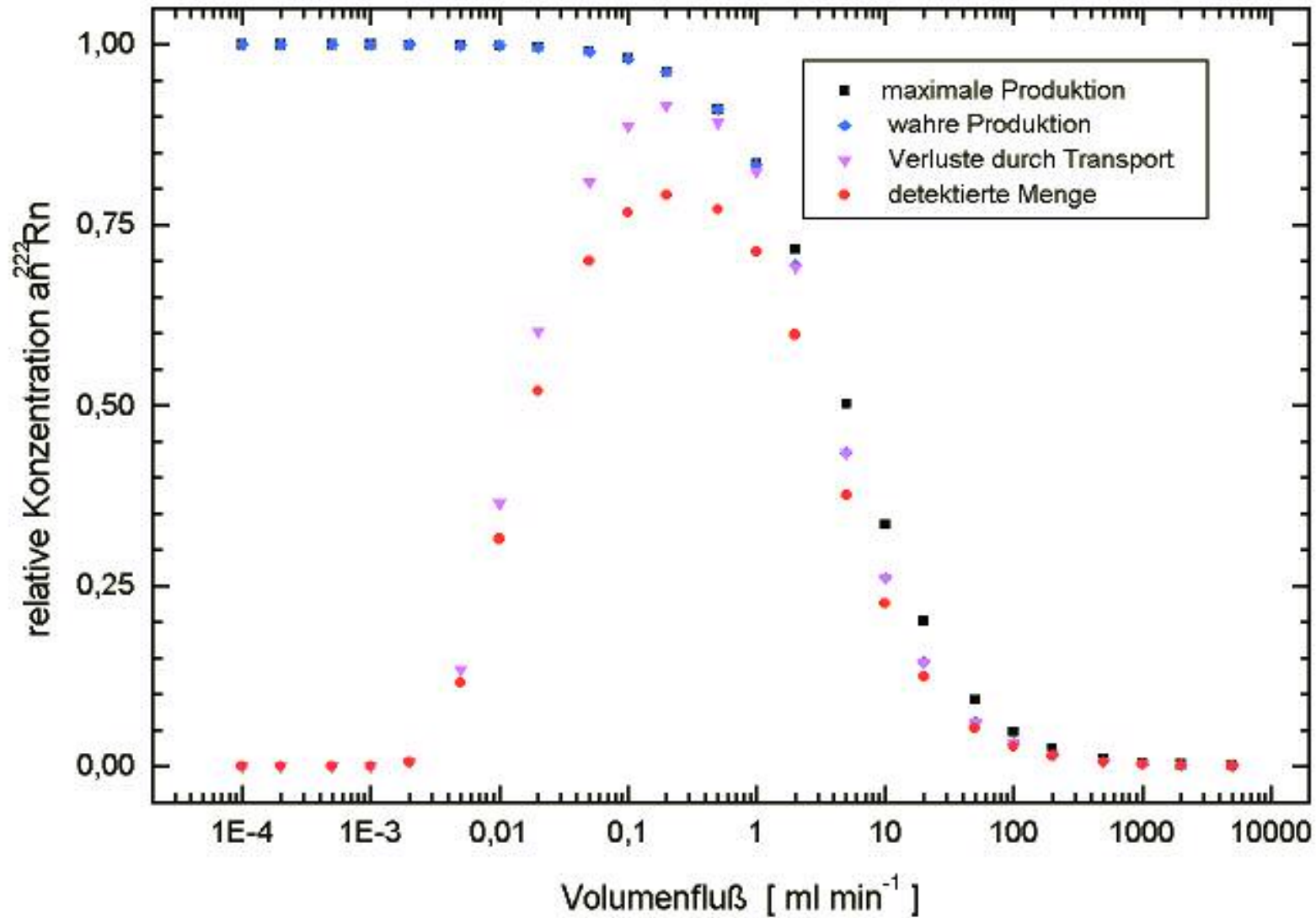


Abbildung 03: relative Aktivität in der Vorlagekammer als Funktion des Volumenflusses

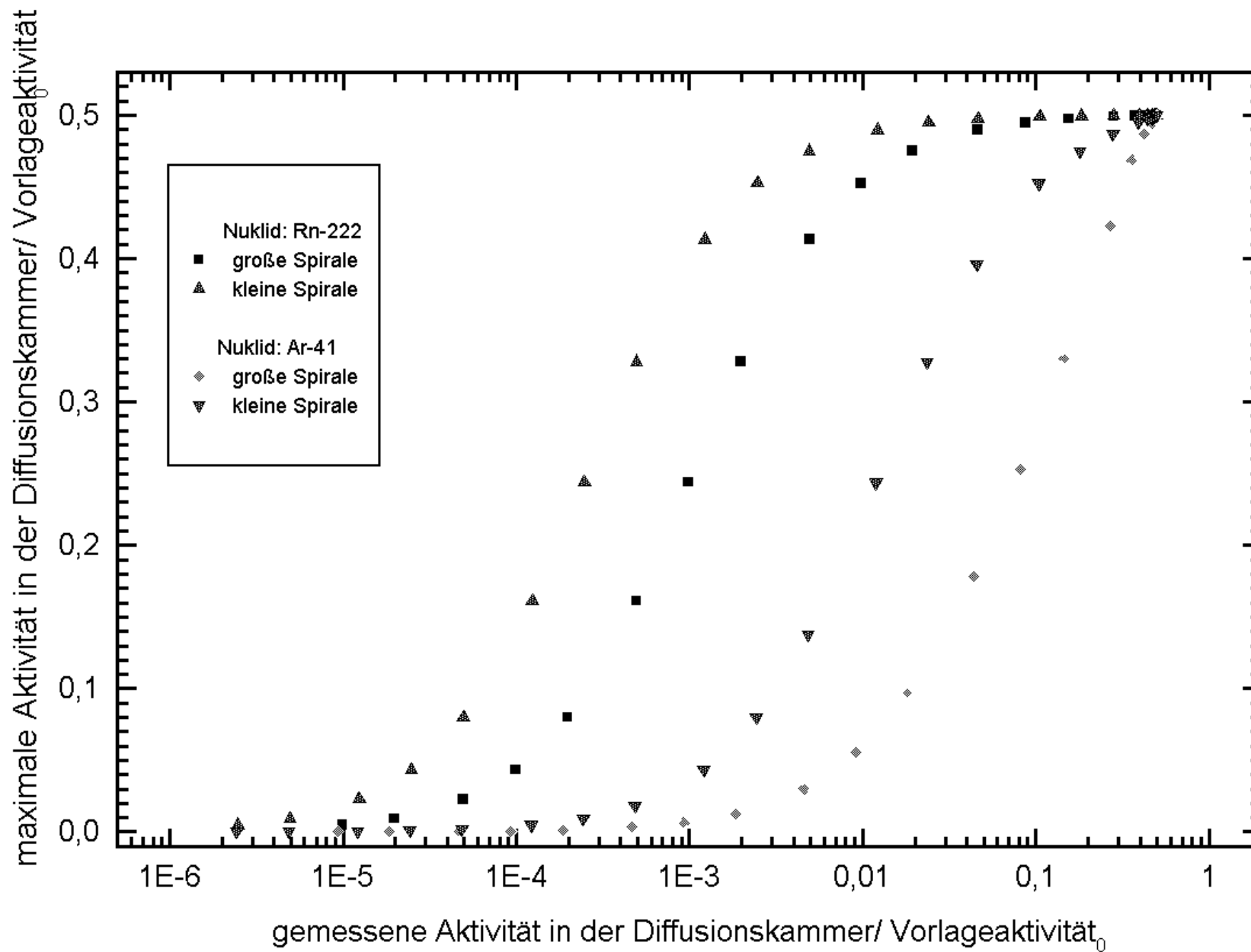


Abbildung 04: Gleichgewichtsaktivität als Funktion der stationären Aktivität