



Bundesministerium
für Umwelt, Naturschutz
und Reaktorsicherheit

SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

CHARAKTERISIERUNG DER NICHT AN AEROSOLTEILCHEN GEBUNDENEN ANTEILE DER RADONZERFALLSPRODUKTE BEI UMWELTBEDINGUNGEN

BMU - 2004-644



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

BMU – 2004-644

**„Charakterisierung der nicht an Aerosolteilchen
gebundenen Anteile der Radonzerfallsprodukte bei
Umweltbedingungen“**

Institut für Physikalische Chemie

Isotopenlabor

Universität Göttingen

Tammanstraße 6

37077 Göttingen

Patrick Pagelkopf

Prof. J. Porstendörfer

Projektleitung:

Prof. G. Eckold

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 durch das Institut für Physikalische Chemie an der Universität Göttingen erstellt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer 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

Inhalt

1.	Einleitung und Zielsetzung	4
2.	Folgeprodukte	7
2.1	Uran-Radium-Zerfallsreihe	7
2.2	Auf die Folgeprodukte einwirkende Prozesse anhand des Beispiels von ^{218}Po	8
2.3	Clusterbildung	11
2.4	Zusammenhang zwischen Mobilität, Diffusionskoeffizienten und Teilchengröße	13
2.5	Anlagerung an Aerosole und Ablagerung auf Oberflächen	16
3.5.1	Anlagerung an Aerosole	16
3.5.2	Ablagerung auf Oberflächen	17
2.6	Neutralisation	20
3.	Modellrechnung zur Bestimmung des geladenen Anteils der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb	23
3.1	Grundlage der Modellierung	23
3.2	Modellrechnung zur Bestimmung der geladenen Anteile der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb	25
4.	Messaufbau und Messverfahren	32
4.1	Definition der Penetration	33
4.2	Trennkondensator	34
4.2.1	Anlagerung von Radonfolgeprodukten in Röhren	34
4.2.2	Aufbau des Trennkondensators	35
4.3	Online-Back-Screen-Technik (OBST)	37
4.3.1	Anlagerung auf Drahtgitternetzen	37
4.3.2	Aufbau der OBST	40
4.4	Vorbereitende Messungen	41
4.5	Bestimmung der geladenen Anteile der unangelagerten Radonzerfallsprodukte	45
4.6	Übersicht über die Messungen in der Radonkammer	48
4.6.1	Verwendete Detektoren	50
4.6.2	Messung des Radongases	51
4.6.3	Messung der Folgeprodukte	52
4.6.4	Berechnung der Folgeproduktkonzentration	53

4.6.5	Bestimmung der Ionendosisleistung	55
4.6.6	Bestimmung der übrigen Parameter (Luftfeuchte und Aerosolkonzentration)	57
4.7	Beweglichkeitsspektrometer	58
4.7.1	Aufbau des radialen Beweglichkeitsspektrometers (RBS)	58
4.8	Testmessungen mit dem RBS	64
4.8.1	Experimenteller Aufbau	64
4.8.2	Messung der Abscheideverluste auf der RBS-Oberfläche	65
4.8.3	Messung des Abscheideverhaltens im el. Feld des RBS bei Variation der angelegten Spannung	66
4.8.4	Messung des Abscheideverhaltens im el. Feld des RBS bei konstanter Spannung	68
5.	Messergebnisse	69
5.1	Geladener Anteil des ^{218}Po nach dem Radonzerfall	69
5.2	Geladener Anteil des ^{218}Po und des ^{214}Pb unter Raumlufbedingungen	70
5.2.1	Geladener Anteil des unangelagerten ^{218}Po und des ^{214}Pb unter Variation der Radongaskonzentration bei verschiedenen Luftfeuchten	70
5.2.2	Geladener Anteil des ^{218}Po und des ^{214}Pb bei verschiedenen Feuchten der Kammerluft und konstanter Radongaskonzentration	76
6.	Zusammenfassung	79
7.	Anhänge	82
7.1	Literaturverzeichnis	82
7.2	Zusammenhang zwischen Diffusionskoeffizient und Teilchendurchmesser	90

1. Einleitung und Zielsetzung

Die Exposition durch Radon und seiner Folgeprodukte ist nach heutiger Erkenntnis die zweithäufigste Ursache für Lungenkrebs [Jacobi, 1984]. Die Strahlung des Radons und seiner Folgeprodukte führt in Deutschland zu einer effektiven Dosis von etwa 1,4 mSv pro Jahr. Somit bilden sie den größten Anteil an der natürlichen Strahlenexposition welche insgesamt im Jahr 2,4 mSv beträgt [BMU, 1997]. Für eine Abschätzung, ab wann bzw. in welchem Maße und unter welchen Bedingungen die Exposition durch das Radon und seine Folgeprodukte zu einem Gesundheitsrisiko führt, ist eine umfassende Kenntnis ihrer physikalischen Eigenschaften und ihres Verhaltens unter Umweltbedingungen notwendig. Grundsätzlich existieren zwei Herangehensweisen, um das Problem der natürlichen Strahlenexposition zu beschreiben. Auf der einen Seite stehen die Epidemiologen, die auf der Grundlage großer Fallzahlen, zum Beispiel der Uranbergarbeiter der Wismut AG, den Zusammenhang zwischen Exposition und Krebsrisiko untersuchen [Wichmann, 2002]. Auf der anderen Seite steht eine große Zahl von wissenschaftlichen Arbeiten, welche sich über Modellrechnungen mit den möglichen Auswirkungen der Radonexposition auf das Krebsrisiko auseinandersetzen [Jacobi, Einfeld, 1980; Zock, 1996].

Aus der bisherigen Erkenntnis des Strahlenschutzes heraus spielt von den drei Radonisotopen (Actinium, Radon und Thoron), lediglich das ^{222}Rn , oder besser seine Folgeprodukte, eine relevante Rolle. Diese Folgeprodukte existieren in zwei Formen:

1. Als „unangelagerte Cluster“, mit Partikeldurchmessern im Bereich von 0,5 nm bis 5 nm.
2. Als „Aerosolangelagerte Cluster“ mit Partikeldurchmessern im Bereich von 5 nm bis 3000 nm

Besonders der Dosisbeitrag durch die unangelagerten Folgeproduktcluster ist abhängig von deren Eigenbeweglichkeit (Diffusivität). Kleine Änderungen des Diffusionskoeffizienten ergeben große Änderungen in der Dosis durch Inhalation der entsprechenden Stoffe (Porstendörfer 2001). Neben der Inhalationsdosis, bestimmt die Diffusivität der unangelagerten Folgeproduktcluster die Anlagerung an Aerosolteilchen und die Ablagerung auf Oberflächen („plate-out“).

In der Literatur wird über Diffusionskoeffizienten im Bereich von $0,01 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ bis $0,1 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ berichtet (Chamberlain und Dyson 1956; Raabe 1968; Thomas und LeClare 1970; Porstendörfer und Mercer 1979; Frey et. al. 1981; Goldstein und Hopke 1985; Su et. al. 1989). Die Bandbreite der gefundenen Diffusionskoeffizienten kann durch unterschiedlich alte Folgeproduktcluster, unterschiedliche Luftfeuchten und unterschiedliche Radon-/Thoronkonzentrationen in den verschiedenen Experimenten erklärt werden. Darüber hinaus wurde in den vorangehenden Studien der Einfluss der elektrischen Ladung der Folgeproduktcluster auf den Diffusionskoeffizienten vernachlässigt. Diese Ladung ist ebenfalls abhängig von der Konzentration des Radons bzw. des Thorons. Einzig Porstendörfer und Mercer (1979) berichteten, dass der Diffusionskoeffizient von der relativen Feuchte der Luft und der Thoronkonzentration abhängig ist. Bei hohen Thoronkonzentrationen und relativen Luftfeuchten von über 30 % wurde für neutrale Cluster ein Diffusionskoeffizient von $0,068 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ gemessen. Für die positiv geladenen $^{216}\text{Po}/^{212}\text{Pb}$ -Cluster wurde hingegen, bei niedriger relativer Luftfeuchte von unter 2 % und geringen Thoronkonzentration, der Diffusionskoeffizient zu $0,024 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ bestimmt. Erst durch die grundlegenden Studien von Hopke und seinen Mitarbeitern (Goldstein und Hopke 1985, Chu und Hopke 1988) wissen wir, dass die Neutralisation der geladenen Folgeproduktcluster im wesentlichen von der relativen Luftfeuchte und der Radon bzw. Thoronkonzentration abhängig ist. Die von Dankelmann (2001) durchgeführten Experimente zur Neutralisation geladener Radonfolgeproduktcluster in Luft ergaben für Luftfeuchten von unter 30 % nur einen geringen Einfluss der relativen Feuchte auf die Neutralisationsrate. Dieses Ergebnis erklärt nun die relativ konstanten Diffusionskoeffizienten der $^{216}\text{Po}/^{212}\text{Pb}$ -Cluster für Luftfeuchten von unter 30 % in den Experimenten von Porstendörfer und Mercer (1979).

Auch die Messungen der Partikelgrößenverteilung der Folgeproduktcluster in Wasserwerken mit hohen Luftfeuchten (>95 %) und hohen Radongaskonzentrationen (im Bereich von 400 kBq) zeigen deutlich kleiner Clusterdurchmesser als die Messungen in Häusern mit geringeren relativen Feuchten und Radongaskonzentrationen. Zusätzlich hierzu ist anzumerken, dass unter hohen Radongaskonzentrationen und relativen Luftfeuchten nahezu alle unangelernten Cluster neutral vorliegen.

Die elektrische Ladung der Folgeproduktcluster beeinflusst aber nicht nur den Diffusionskoeffizient, d.h. die mechanische Eigenbeweglichkeit, sondern natürlich auch über elektrostatische Kräfte die An- bzw. Ablagerung auf Aerosole und Oberflächen.

Um die immer noch bestehenden Lücken in unserem Wissen über den geladenen Anteil der unangelagerten Radonfolgeprodukte unter Raumlufbedingungen und den Einfluss von Luftfeuchte und Radonkonzentration auf die Neutralisation zu schließen wurde das Strahlenschutzprojekt 4180 gestartet.

Ziel des Strahlenschutzprojektes 4180 war es daher, unter Raumlufbedingungen, d.h. Radongaskonzentrationen von $10 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $10^4 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, der Variation der Luftfeuchte und unter ständiger Überwachung der Aerosolkonzentration und der Temperatur in der Kammer, den geladenen Anteil an den freien Clustern des ^{218}Po und des ^{214}Pb nicht nur zu messen, sondern auch ein bestehendes Raummodell so zu erweitern, dass unter Gleichgewichtsbedingungen der geladene Anteil der beiden Folgeprodukte zuverlässig zu bestimmen ist. Über die Verifikation dieses Modells durch die angestellten Messungen soll so ein allgemein gültiges Modell entstehen. Darüber hinaus sollte ein Beweglichkeitsspektrometer geplant und gebaut werden, mit welchen die elektrische Mobilitätsverteilung der geladenen ^{218}Po -Cluster mit einer größeren Genauigkeit als bisher gemessen werden konnten.

2. Folgeprodukte

2.1 Uran-Radium-Zerfallsreihe

Die Uran-Radium-Zerfallsreihe ist eine von drei heute noch existierenden Zerfallsreihen. Als Zerfallsreihe wird der gesamte Komplex von Mutternuklid und allen zugehörigen Töchtern definiert. Die Bezeichnung der einzelnen Zerfallsreihen erfolgt nach der Mutter und ihren wichtigsten Töchtern. Die drei Zerfallsreihen sind:

- Die Thorium-Reihe
- Die Uran-Radium-Reihe
- Die Uran-Actinium-Reihe

Es hat sich im Laufe der Zeit eingebürgert, das Radionuklid ^{222}Rn als Radon und das ^{220}Rn als Thoron zu bezeichnen. Beide Elemente sind radioaktive Edelgase, welche überall im Boden und in der Luft zu finden sind. Das Radon entstammt der Uran-Radium und das Thoron der Thorium-Reihe. Aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten, das Radon hat eine Halbwertszeit von 3,82 Tagen und das Thoron eine Halbwertszeit von 55 Sekunden, liegt das Thoron im allgemeinen in sehr viel geringerer Konzentration als das Radon vor. Die Tabelle 1 zeigt einen Ausschnitt aus der ^{238}U -Zerfallsreihe, bis hin zum ^{206}Pb , mitsamt den Halbwertszeiten, den Energien und den Übergangswahrscheinlichkeiten. Die für diese Arbeit relevanten Nuklide sind grau unterlegt, die als kurzlebig bezeichneten sind zusätzlich noch fett gedruckt. Vergleicht man die Halbwertszeit des ^{218}Po mit 3,05 min gegenüber der des ^{214}Pb mit 26,8 min und des ^{214}Bi 19,9 min, so wird deutlich, dass innerhalb weniger Minuten die maximale Aktivität des ^{218}Po erreicht wird und dass alle nachfolgenden Folgeprodukte nur mit der Zerfallskonstante des ^{218}Po entstehen können. Das bedeutet aber auch, dass nur das ^{218}Po zu einem größeren Teil unangelagert vorliegen kann [Reineking et al., 1985; Reineking et al., 1988].

Tabelle 1: Die für diese Arbeit relevanten Nuklide der Uran-Radium Zerfallsreihe (United Nations, 1988)

Radionuklid	Halbwertszeit	Zerfallsart	Energie (Übergangswahrscheinlichkeit)
^{238}U	$4,468 \cdot 10^9 \text{ a}$	α	4,20 MeV (77%) 4,15 MeV (23%)
↓			
^{226}Ra	1600 a	α	4,78 MeV (94.45%) 4,60 MeV (5.55%)
^{222}Rn	3,8 d	α	5,49 MeV (99.92%) 4,99 MeV (0.08%)
^{218}Po	3,05 min	α	6,00 MeV (100%)
^{214}Pb	26,8 min	β^- γ	0,67 MeV (46%) 0,73 MeV (41%) 352 keV (35.1%)
^{214}Bi	19,9 min	β^- γ	3,28 MeV (19.9%) 609 keV (44.6%)
^{214}Po	164 μs	α	7,69 MeV (100%)
^{210}Pb	22,3 a	β^- γ	0,017 MeV (81%) 0,063 MeV (19%) 46,54 keV (4.24%)
^{210}Bi	5,01 d	β^-	1,16 MeV (99%)
^{210}Po	138,4 d	α	5,31 MeV (99%)
^{206}Pb	stabil	stabil	

2.2 Auf die Folgeprodukte einwirkende Prozesse anhand des Beispiels von ^{218}Po

Die Radonzerfallsprodukte sind alle Schwermetalle und einer Reihe von chemischen und physikalischen Prozessen unterworfen, welche schematisch in der Abbildung 1 dargestellt werden. Durch den Alphazerfall des Radons verliert der Kern zwei Protonen und zwei

Neutronen. Beim Passieren der Elektronenhülle löst dieses Alphateilchen mit hoher Wahrscheinlichkeit mehr als zwei Elektronen aus der Hülle aus. Die so entstehenden ^{218}Po Rückstoßkerne liegen deshalb überwiegend positiv geladen vor. Innerhalb von wenigen Millisekunden fangen die ^{218}Po -Ionen einen Teil der Elektronen wieder ein. Die Messungen von Wellisch belegen, dass nach diesem primären Einfang 88% des ^{218}Po positiv geladen, als Ion und 12% ungeladen, also neutral, in atomarer Form vorliegen [Wellisch, 1913]. Nun wirken direkt mehrere miteinander konkurrierende Prozesse auf das ^{218}Po ein. Die Clusterbildung (siehe Kapitel 3.3), die Neutralisation (siehe Kapitel 3.6), die Anlagerung an Aerosole (siehe Kapitel 3.5.2) und die Ablagerung auf Oberflächen (siehe Kapitel 3.5.2). An normaler Luft verbindet sich das ^{218}Po sofort mit Sauerstoff und bildet so einen $^{218}\text{PoO}_2$ -Kern [Busigin et al., 1981]. Innerhalb von ungefähr 10^{-7} s nach der Bildung des ^{218}Po lagert es sich an Dämpfe (hier hauptsächlich H_2O), und an die in der Atmosphäre vorhandenen Gase (z. B. SO_2 , CO_2) an. Durch diesen Prozess bilden sich mehr oder weniger stabile Gebilde, welche Cluster genannt werden. Die Clustergröße bestimmt die Beweglichkeit der Partikel und ist ihrerseits wiederum abhängig vom Ladungszustand des ^{218}Po . Als Maß der Beweglichkeit dient der sog. Diffusionskoeffizient (D , [$\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$]; \rightarrow Brown'sche Molekularbewegung). Da immer ein Gemisch an Ladungszuständen vorliegt, liegt immer auch ein Gemisch an verschiedenen Clustergrößen vor. Gleichzeitig finden über die Anlagerung der Spurengase und Dämpfe Neutralisationsprozesse statt. Aus den Messungen von Chu und Hopke [1988] ist bekannt, dass es drei verschiedene Neutralisationsmechanismen gibt:

- Kleinionenrekombination
- Direkter Elektronentransfer zu geladenen $^{218}\text{PoO}_2$ -Molekülen (unter Umweltbedingungen dominant)
- Indirekter Elektronenübergang, auch Scavenging, genannt, über Radikale wie das OH (bei Abwesenheit von O_2 , d.h. wenn sich kein $^{218}\text{PoO}_2$ bilden kann, dominant)

Durch diese Prozesse verändert sich sowohl das Größenspektrum, als auch das Verhältnis der geladenen ^{218}Po -Clustern gegenüber den neutralen ^{218}Po -Clustern. Dieses Verhältnis gibt, bei Kenntnis von Radongas-, Aerosolkonzentration, Temperatur und Luftfeuchte, Aufschluss über die Neutralisation. Aufgrund ihrer kleinen Partikelgröße verfügen die Cluster über eine hohe Eigenmobilität. D.h. sie können sich unabhängig von den anderen

Transportmechanismen in der Luft, wie turbulente Diffusion, Konvektion, Sedimentation und der Ablenkung in elektrischen Feldern, bewegen. Treffen sie auf eine Oberfläche oder ein Aerosol so bleiben sie daran haften.

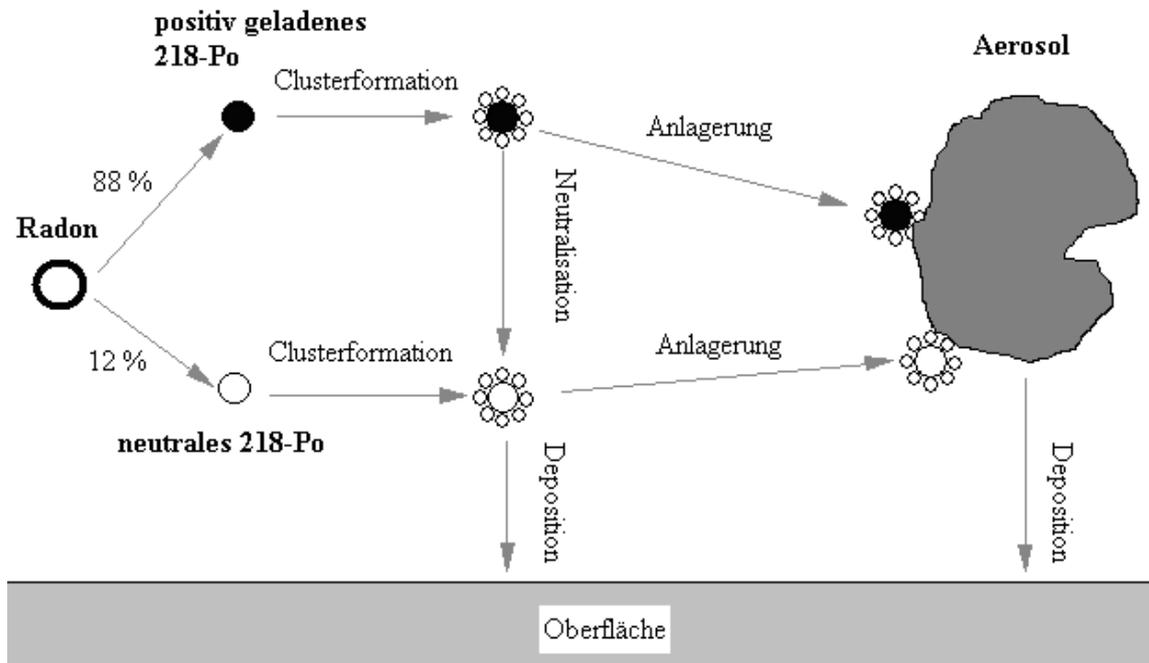


Abbildung 1: Schematische Darstellung der auf das ^{218}Po , nach der Entstehung durch den Alpha-Zerfall des ^{222}Rn , einwirkenden physikalischen Prozesse in der Luft

Ausschließlich durch den Energieübertrag, welcher beim Alphazerfall auftritt, sind die Folgeprodukte in der Lage sich wieder von einer Oberfläche zu lösen. Diesen Vorgang nennt man Recoil. Der Prozess des Recoils ist von der Emmissionsrichtung abhängig. Er wird als Wahrscheinlichkeit ausgedrückt. Mercer [1976] berechnete diese Wahrscheinlichkeit zu 0,81, während die Messungen, welche Porstendörfer [1994] an natürlichen Innenraum Aerosolen vornahm, einen Wert von $0,5 \pm 0,15$ ergaben. Durch den Ablagerungsprozess auf Oberflächen tritt eine Verringerung der Konzentration der luftgetragenen Radonfolgeprodukte auf. Haften die Zerfallscluster hingegen an Aerosolen an, so findet die weitere Ablagerung im Wesentlichen über Sedimentationsvorgänge statt. Diese dauern etwa hundertmal länger als die Ablagerung auf Oberflächen durch die Diffusion. Man unterscheidet daher zwischen den unangelagerten oder auch freien Zerfallsclustern mit einer Größenverteilung im Bereich von 0,5 nm bis 3 nm und den angelagerten Clustern mit einer Größenverteilung im Bereich von 10 nm bis 1000 nm mit einem Median bei 100 nm bis 200 nm. Die letztgenannte Verteilung entspricht der Verteilung der natürlichen Aerosole (siehe auch Abb. 2). Interessant hierbei ist, dass die Filtereffektivität der Nase für Aerosole im Bereich von 100 bis 200 nm maximal ist.

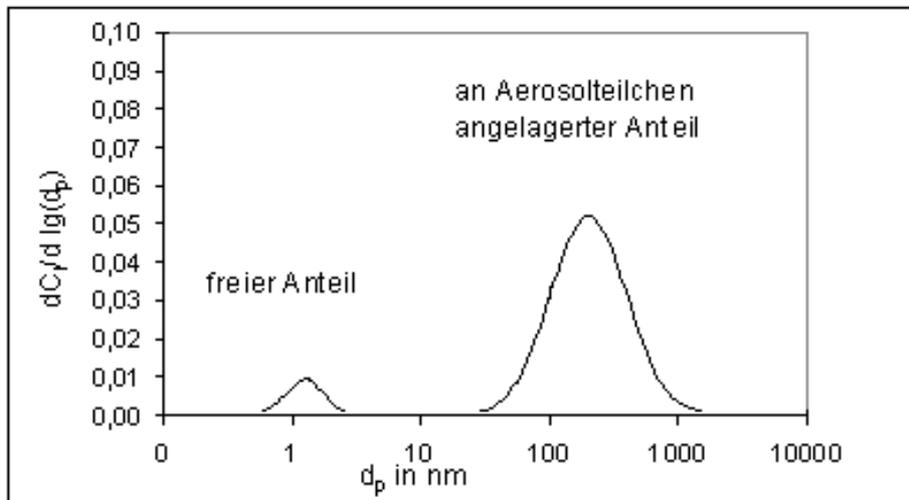


Abbildung 2: Aktivitätsgrößenverteilung des ^{218}Po in Luft

2.3 Clusterbildung

Grundlage zur Beschreibung von Clusterwachstum und stabiler Clustergröße ist die so genannte Thompsonformel aus der Thermodynamik. Vor allem Raes [1985] aber auch Castleman [1982] stellten mit dieser Formel Überlegungen zur Bildung von Clustern des ^{218}Po mit Wasser- und Schwefelmolekülen an:

Die zur Clusterbildung benötigte freie Energie ΔG ist abhängig von der Summe aus drei Termen. Es gehen hier die Kondensationswärme, die Oberflächenspannung und die elektrische Feldenergie ein. Betrachtet man die freie Energie in Abhängigkeit von der Clustergröße, so ist diese minimal für ^{218}Po -Ionen, welche von Wassermolekülen umlagert werden. Ein Anwachsen der Feuchte hat zur Folge, dass die Clustergröße, bei der die freie Energie minimal ist, ebenfalls anwächst. Ist ein neutraler ^{218}Po -Kern von Wassermolekülen umlagert, so liegt das Minimum für den Clusterradius bei 0. In anderen Worten bedeutet dies, dass bei der Neutralisation eines geladenen Clusters, die ihn umgebenden Wassermoleküle abgedampft werden. Stellt man nun dieselben Überlegungen für ein Gasgemisch aus Wasser- und Schwefelsäuremolekülen an so kann man je nach Konzentration dieser Moleküle zwischen folgenden Fällen unterscheiden:

- Eine Abnahme der freien Energie der geladenen Cluster mit wachsender Größe und ein Maximum der freien Energie für neutrale Cluster. Daraus folgt, dass die geladenen Cluster in diesem Fall immer weiter anwachsen können. Selbst nach der Neutralisation, kann dieser Wachstumsprozess weitergehen, sofern bis dahin eine kritische Größe erreicht wurde. Ist dies nicht der Fall, so dampfen die angelagerten Moleküle wieder ab.
- Sattelpunkte in der Abhängigkeit der freien Energie von der Clustergröße. D.h. bei der Neutralisation eines Clusters dessen Größe einer freien Energie in einem Sattelpunkt entspricht, dampfen die Moleküle ab.

Bei der Übertragung dieser Berechnungen auf Umweltverhältnisse, muss man berücksichtigen, dass das ^{218}Po in der Luft $^{218}\text{PoO}_2$ bildet [Busigin et al., 1981]. Abhängig von der Luftfeuchte kann das geladene $^{218}\text{PoO}_2$ bis zu neun Wassermoleküle an sich binden. Bei diesem Vorgang werden dann die Sauerstoffmoleküle verdrängt.

Trotz dieses theoretischen Ansatzes zur Beschreibung der Bedingungen unter denen stabile ^{218}Po -Cluster entstehen können ist im Grunde genommen wenig über den Formationsprozess und die Größenverteilung der ^{218}Po -Cluster bekannt. Der Grund hierfür liegt unter anderem darin dass ihre Größenordnung im Subnanometerbereich liegt, sich also den klassischen Methoden zur Größenbestimmung (z. B. mit Hilfe von Kondensationskernzählern) entzieht. Auch die extrem instabile Natur der unangelagerten ^{218}Po -Cluster, ihre durch die geringe Partikelgröße bedingten hohen Diffusionskoeffizienten (siehe auch 3.4 zum Zusammenhang zwischen Partikelgröße, Mobilität und Diffusionskoeffizient) und ihre unter Umweltbedingungen geringe Anzahl erschweren ihre messtechnische Erfassung. So ist zum Beispiel der Einfluss des O_2 auf das Verhalten des ^{218}Po noch ebenso wenig geklärt wie der tatsächliche Einfluss der Luftfeuchte auf die Neutralisation der ^{218}Po -Ionen und Cluster unter Umweltbedingungen [Goldstein, Hopke 1985; Frey et al 1981; Castleman 1991, Dankelmann 1998]. In den Jahren von 1960 bis 1970 haben sich eine Reihe von französischen Forschern mit dem el. Beweglichkeitsspektrum der Thoronfolgeprodukte befasst [Bricard et al. 1965, 1966, 1968; Fontan et al. 1969; Billard, 1967]. Als Spektrometer dienten im Wesentlichen Zylinderkondensatoren, in welchen die Folgeproduktcluster unter Variation der el. Feldstärke auf Photoplatten und Kernemulsionen abgeschieden wurden. In Abhängigkeit des Trägergases, der verwendeten Thoronkammern (Größe und Material) und

Thorongaskonzentration wurden 2 bis 4 Mobilitätsgruppen gefunden. Neuere Untersuchungen zur el. Mobilität und Größenverteilung der unangelernten ^{218}Po -Cluster wurden von Hopke et al. [1997] durchgeführt. Es wurden ein radiales Beweglichkeitsspektrometer und speziellen Atmosphären (Stickstoff, Reinstluft, Stickstoff mit Ethanol oder Butanol Zusätzen) verwendet. Je nach Gasgemisch konnten bis zu drei Größenmodi identifiziert werden. 0,75 nm für ^{218}Po -Cluster ohne Alkoholmoleküle, 1,2 nm für ^{218}Po -Cluster mit Ethanolmolekülen und 2,2 nm für ^{218}Po -Cluster mit Butanolmolekülen. Weitere Größenmodi wurden von den Autoren ausdrücklich nicht ausgeschlossen und von einer Verbesserung des radialen Beweglichkeitsspektrometers abhängig gemacht. Die Größenverteilung des unangelernten ^{218}Po unter Umweltbedingungen wurde von Reineking et al. [1993] mithilfe von Diffusionsbatterien untersucht. Dabei wurden zwei Größenmodi mit 0,77 nm und 3,3 nm gefunden. Auch hier werden weitere Größenmodi nicht ausgeschlossen.

2.4 Zusammenhang zwischen Mobilität, Diffusionskoeffizienten und Teilchengröße

Um die Beweglichkeit eines Teilchens in der Luft zu beschreiben, greift man auf die Dynamik zurück. Es gibt dabei das Stokesche Gesetz für die Bewegung einer Kugel in der Luft ohne Mitnahmeeffekte (sog. slips):

$$F_w = 3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot d_p \cdot u \quad (1)$$

- F_w : Kraft auf das Teilchen
- η : Dynamische Viskosität
- d_p : Teilchendurchmesser
- u : Teilchengeschwindigkeit

Für die Beweglichkeit des Teilchens gilt:

$$M = \frac{u}{F_w} \quad (2)$$

- M : Mechanische Mobilität

Daraus folgt für die mechanische Mobilität.

$$M = \frac{1}{3 \cdot \pi \cdot d_p \cdot \eta} \quad (3)$$

Bei Teilchengrößen unterhalb der mittleren freien Weglänge der ungebundenen Fluidmoleküle muss man Mitnahmeeffekte berücksichtigen. Diese werden durch die so genannte Cunningham – Slip Korrektur ausgeglichen.

Es gilt:

$$C_u = 1 + 2,492 \cdot \frac{\lambda}{d_p} + 0,84 \cdot \frac{\lambda}{d_p} \cdot \exp\left(-0,43 \cdot \frac{d_p}{\lambda}\right) \quad (4)$$

C_u : Cunningham-Slip-Korrektur

λ : mittlere freie Weglänge in der Luft

Damit ergibt sich die mechanische Mobilität zu:

$$M = \frac{C_u}{3 \cdot \pi \cdot d_p \cdot \eta} \quad (5)$$

Der Zusammenhang zwischen der Diffusionskonstanten und der Größe eines Teilchens ergibt sich aus der von Einstein aufgestellten Gleichung:

$$D = k \cdot T \cdot M \quad (6)$$

D : Diffusionskoeffizient

k : Boltzmannkonstante

T : Temperatur

Und somit ist:

$$D = \frac{C_u \cdot k \cdot T}{3 \cdot \pi \cdot d_p \cdot \eta} \quad (7)$$

In einem elektrischen Feld der Feldstärke E wirkt auf ein n -Fach geladenes Teilchen die beschleunigende Kraft:

$$F = n \cdot e \cdot E \quad (8)$$

- F : Kraft auf das geladene Teilchen
- n : Anzahl der Ladungen des Teilchens
- e : Elementarladung
- E : Elektrische Feldstärke

Im Anhang (Kapitel 7.2) findet sich eine Tabelle zusammen mit einer Graphik für das Verhältnis von Teilchengröße und Diffusionskoeffizient.

Für die elektrische Mobilität gilt folgendes:

Die elektrische Mobilität eines geladenen Teilchens ist definiert als Quotient der Teilchengeschwindigkeit und der elektrischen Feldstärke:

$$Z = \frac{u}{E} \quad (9)$$

- Z : Elektrische Mobilität

Analog zur mechanischen Mobilität kann der Zusammenhang zwischen der elektrischen Mobilität und dem Teilchendurchmesser aus dem Stokeschen Gesetz hergeleitet werden. Es ergibt sich daher:

$$\begin{aligned} Z &= \frac{n \cdot e}{3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot d_p} \cdot C_u \\ &= M \cdot n \cdot e \end{aligned} \quad (10a-b)$$

2.5 Anlagerung an Aerosole und Ablagerung auf Oberflächen

2.5.1 Anlagerung an Aerosole

Die Konzentration Z der Aerosole in Luft sowie der Anlagerungskoeffizient $\beta(d)$ üben den wohl stärksten Einfluss auf den unangelagerten Anteil der Radonfolgeprodukte aus. Diesen Einfluss drückt man über die Anlagerungsrate X aus, die mit folgender Gleichung dargestellt werden kann:

$$X = \int_0^{\infty} \beta(d) \cdot \frac{\partial Z(d)}{\partial d} \partial d \quad (11)$$

X : Anlagerungsrate

$\beta(d)$: Anlagerungskoeffizient

$\frac{\partial Z(d)}{\partial d}$: Anzahlgrößenverteilung

$\int_0^{\infty} \frac{\partial Z(d)}{\partial d} \partial d$: Teilchenkonzentration Z

Für atmosphärische Aerosole wurde ein mittlerer Anlagerungskoeffizient in der Raumluft von $\beta = 2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ bis $\beta = 5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ mit einer starken Abhängigkeit vom geladenen Anteil des ^{218}Po gemessen [Mohnen 1969; Porstendörfer, Mercer 1978; Porstendörfer et al. 1987]. Damit kann aus der Kenntnis der Aerosolkonzentration die Anlagerungsrate errechnet werden. In Räumen mit geringer Ventilation und ohne zusätzliche Aerosolquellen, wie Zigarettenrauch etc., liegt damit die Anlagerungsrate X in einem Bereich von 20 h^{-1} bis 50 h^{-1} . Kochdunst, Zigarettenrauch und Ofenheizungen können diese Anlagerungsrate auf Werte von bis zu 1000 h^{-1} ansteigen lassen.

Bei einer Vernachlässigung der Ablagerung auf Oberflächen, dem so genannten plate-out, und unter der Annahme das die Zerfallskonstante λ_j kleiner ist als die Anlagerungsrate X ($\lambda_j < X$) kann man näherungsweise den unangelagerten Anteil f_p der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb folgendermaßen bestimmen:

$$f_{p1} = \frac{\lambda_1}{X} \quad (12-13)$$

$$f_{p2} = \frac{\lambda_2 \cdot R_1}{X}$$

f_{p1}, λ_1, R_1 : Unanglagerter Anteil, Zerfallskonstante
und Recoilfaktor des ^{218}Po

f_{p2}, λ_2 : Unanglagerter Anteil, Zerfallskonstante des ^{214}Pb

2.5.2 Ablagerung auf Oberflächen

In Abhängigkeit der Teilchengröße, elektrischen Feldstärken und Luftturbulenzen sind folgende Transportmechanismen am Ablagerungsprozess beteiligt.

- Die Eigenbeweglichkeit, welche auch als Diffusion oder Braunsche Beweglichkeit bezeichnet wird. Es gilt das:

1. Ficksche Gesetz:

$$j = D \cdot \text{grad}(n) \quad (14)$$

Ist die Teilchenkonzentration sowohl räumlich, als auch zeitlich veränderlich, gilt im eindimensionalen Fall:

2. Ficksche Gesetz:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \cdot \left(D \cdot \frac{\partial n}{\partial x} \right) \quad (15)$$

- Turbulente Diffusion:

Gemäß Fuchs [1964] kann die turbulente Diffusion bei Einführung bestimmter Parameter mathematisch genauso, wie die reine Brownsche Bewegung behandelt werden. Sind die Mischungsvorgänge isotrop und die Durchmesser der auftretenden Wirbel kleiner als die charakteristischen Längen, wie zum Beispiel Körperdimensionen, Diffusionslängen, etc. gelten die Fickschen Gesetze. Zur Beschreibung der Diffusionsvorgänge kann dann ein effektiver Diffusionskoeffizient eingeführt werden, welcher sich aus der Summe des Diffusionskoeffizienten der turbulenten und Brownschen Diffusion ergibt:

$$D_{\text{eff}} = D + D_t \quad (16)$$

D_{eff} : Effektiver Diffusionskoeffizient

D_t : Diffusionskoeffizient der turbulenten Diffusion

- Transport im elektrischen Feld:

Für die elektrische Mobilität gilt (siehe 3.1):

$$\begin{aligned} Z &= \frac{n \cdot e}{3 \cdot \pi \cdot \eta \cdot d_p} \cdot C_u \\ &= M \cdot n \cdot e \end{aligned} \quad (17)$$

Im eindimensionalen Fall, lässt sich daher die durch ein elektrisches Feld verursachte Bewegung wie folgt darstellen:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -Z \cdot E \cdot \text{div}(n) \quad (18)$$

Unter Berücksichtigung der Beiträge der einzelnen Transportmechanismen ist es möglich eine Stoffbilanzgleichung für den Transport von Teilchen durch Diffusion, Konvektion und elektrische Felder aufzustellen:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[(D + D_t) \cdot \frac{\partial n}{\partial x} \right] + (U + Z \cdot E) \cdot \frac{\partial n}{\partial x} \quad (19)$$

Der erste Term beschreibt den diffusiven Transport durch die Eigenbeweglichkeit und auftretende Turbulenzen, der zweite berücksichtigt den konvektiven Transport mit der Geschwindigkeit U und den Einfluss des elektrischen Feldes mit der Feldstärke E.

Durch Ablagerung und Anhaftung an Oberflächen entsteht ein Teilchenstrom zur Oberfläche hin. Für dessen Ablagerungsgeschwindigkeit gilt dann:

$$v_g(d_p) = \frac{j(d_p)}{n(d_p)} \quad (20)$$

$v_g(d_p)$: Ablagerungsgeschwindigkeit

$j(d_p)$: Teilchenstromdichte

$n(d_p)$: Teilchenkonzentration in der Luft

Betrachtet man den Zeitfaktor der Ablagerung [Porstendörfer 1994], so stellt man fest, dass an Aerosolteilchen angelagerte Radonzerfallsprodukte etwa 100-mal langsamer abgeschieden werden als die freien Radonzerfallsprodukte. Mit der Kenntnis der Aktivitätsgrößenverteilung des Radonfolgeprodukts ist es auch möglich eine mittlere Anlagerungsgeschwindigkeit zu berechnen. Die Ablagerungsrate q ergibt sich aus dem Produkt des Verhältnisses von Rauminnenoberfläche O_R und Raumvolumen V_R und der Anlagerungsgeschwindigkeit v_g :

$$q = v_g \cdot \frac{O_R}{V_R} \quad (21)$$

q : Ablagerungsrate

O_R : Rauminnenoberfläche

V_R : Raumvolumen

In Räumen mit geringer Ventilationsrate von unter $0,2 \text{ h}^{-1}$ wurden Ablagerungsraten für angelagerte Radonfolgeprodukte von $q^a = 0,1 \text{ h}^{-1}$ bis $0,2 \text{ h}^{-1}$ bestimmt [Knutson 1983; Wicke

1984; Porstendörfer 1994]. Die Ablagerungsrate der unangelagerten Radonfolgeprodukte q^f wurde mit Werten von $q^f = 10 \text{ h}^{-1}$ bis $q^f = 72 \text{ h}^{-1}$ gemessen [Jacobi 1972; Porstendörfer 1994].

2.6 Neutralisation

Da der Ladungszustand des ^{218}Po einen großen Einfluss auf die Stabilität der Cluster hat, beeinflusst die Rate mit der das ^{218}Po neutralisiert wird die Teilchengröße. Daher wurde eine Reihe von Arbeiten mit dem Ziel die Neutralisationsprozesse qualitativ zu bestimmen durchgeführt [Goldstein, Hopke, 1985; Chu, Hopke, 1988]. Unter verschiedenen Bedingungen wie die Variation des Trägergases, der Konzentration der Spurengase und vor allem der Konzentration des Wasserdampfgehaltes wurde die Neutralisation des geladenen Anteils der ^{218}Po -Cluster untersucht. Die Ergebnisse dieser Versuche lassen den Schluss zu, dass die Neutralisation des ^{218}Po eine Summe aus drei Prozessen ist:

- Kleinionenrekombination
- Direkter Elektronentransfer zu geladenen $^{218}\text{PoO}_2$ -Molekülen (unter Umweltbedingungen dominant)
- Indirekter Elektronenübergang, auch Scavenging genannt, über Radikale wie das OH welches aus der Radiolyse von Wassermolekülen gebildet wird

Aus den Daten, welche aus Dankelmanns [Dankelmann 1998, Porstendörfer et al. 2001] Untersuchungen zur Neutralisation des ^{218}Po gewonnenen wurden, kann auf die Neutralisationsrate bei Kenntnis der relativen Luftfeuchte und der Ionendosisleistung geschlossen werden:

$$v = v_{\text{ET}} + v_{\text{KI}} + v_{\text{OH}} \quad (22)$$

v : Gesamtneutralisationsrate

v_{ET} : Neutralisationsrate aufgrund des direkten Elektronentransfers

v_{KI} : Neutralisationsrate aufgrund von Kleinionenrekombination

v_{OH} : Neutralisationsrate aufgrund des indirekten Elektronentransfers

Wegen der linearen Abhängigkeit der Neutralisationsrate der Kleinionenrekombination und des indirekten Elektronentransfers von der Wurzel der Ionendosisleistung lässt sich obige Gleichung wie folgt schreiben:

$$v = v_{ET} + \frac{\Delta v_{KI}}{\Delta I^{0.5}} I^{0.5} + \frac{\Delta v_{OH}}{\Delta I^{0.5}} I^{0.5} \quad (23)$$

Gemäß der experimentellen Daten Dankelmanns [1998, 2001] ergeben sich folgende Werte für v_{ET} und v_{KI} :

$$v_{CT} = 4.0 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1} \quad (24)$$

$$v_{IR} = 0.10 \cdot 10^{-3} I^{0.5} \text{ s}^{-1} \quad (25)$$

Da die Neutralisationsrate für indirekten Elektronentransfer zusätzlich noch abhängig ist von der relativen Feuchte, muss sie mit Hilfe der Gleichung (23) und der gemessenen Gesamtneutralisationsrate bei einer Ionendosisleistung von $I = 4953 \cdot 10^{-10} \text{ C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h})^{-1}$ ($I = 1950 \text{ } \mu\text{R} \cdot \text{h}^{-1}$) unter und einem Feuchtebereich von 0,09 % bis 95 % (siehe Tabelle 3) berechnet werden.

Tabelle 2: Neutralisationsrate in Umgebungsluft bei einer konstanten Ionendosisleistung von $I = 4953 \cdot 10^{-10} \text{ C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h})^{-1}$ unter Variation der relativen Luftfeuchte

Relative Luftfeuchte, r.h. [%]	Neutralisationsrate, $v [10^{-2} \text{ s}^{-1}]$
0.09	1.46±0.06
0.33	1.54±0.1
1.4	2.01±0.12
3.3	2.96±0.12
11	4.9±0.3
15	5.82±1.02
20	6.33±0.61

Relative Luftfeuchte, r.h. [%]	Neutralisationsrate, $v [10^{-2} \text{ s}^{-1}]$
30	7.27 ± 1.01
50	7.83 ± 0.89
70	8.9 ± 0.77
90	8.73 ± 0.82

Damit ergibt sich die Gesamtneutralisationsrate bei einer relativen Luftfeuchten von 3,3 %, 15 %, 30 %, 50 % und 90 % in Abhängigkeit der Ionendosisleistung zu:

$$\text{r.h.} = 3,3 \% \quad : \quad v = 4.0 \cdot 10^{-3} + 4,9 \cdot 10^{-4} \cdot I^{0.5} \quad (26)$$

$$\text{r.h.} = 15 \% \quad : \quad v = 4.0 \cdot 10^{-3} + 1,2 \cdot 10^{-3} \cdot I^{0.5} \quad (27)$$

$$\text{r.h.} = 30 \% \quad : \quad v = 4.0 \cdot 10^{-3} + 1,6 \cdot 10^{-3} \cdot I^{0.5} \quad (28)$$

$$\text{r.h.} = 50 \% \quad : \quad v = 4.0 \cdot 10^{-3} + 1,7 \cdot 10^{-3} \cdot I^{0.5} \quad (29)$$

$$\text{r.h.} = 90 \% \quad : \quad v = 4.0 \cdot 10^{-3} + 1,9 \cdot 10^{-3} \cdot I^{0.5} \quad (30)$$

3. Modellrechnung zur Bestimmung des geladenen Anteils der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb

3.1 Grundlage der Modellierung

Eine der Aufgaben dieser Arbeit bestand in der Modellierung des zeitlichen Verlaufs der Neutralisation des geladenen Anteils der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb unter den Bedingungen wie sie normalerweise in Räumen vorkommen. Bereits 1972 wurde von Jacobi [1972] ein mathematisches Modell zur Vorhersage der vertikalen Verteilung des Radons und seiner Folgeprodukte in der Luft von Uran Minen aufgestellt. Dieses Modell wurde von Porstendörfer et al [1978] überarbeitet, um alle relevanten Faktoren, welche die Konzentration der luftgetragenen Radionuklide beeinflussen, einzuarbeiten und so vorhersagen über die Fraktion der unangelagerten Folgeprodukte treffen zu können. Dazu ist es jedoch nötig neben der Konzentration des ^{222}Rn auch die Folgeproduktkonzentrationen und die Aerosolkonzentrationen zu kennen. Ausgehend von einer kompletten Durchmischung der Raumluft kann die Konzentration des Radons in Innenräumen durch folgende Differentialgleichung beschrieben werden:

$$\frac{dC_0^i}{dt} = e' + v \cdot C_0^a - \lambda_0 \cdot C_0^i - v \cdot C_0^i \quad (31)$$

C_0^i : Konzentration des Radons im Raum

C_0^a : Konzentration des Radons in der Außenluft

λ_0 : Zerfallskonstante des Radons

v : Ventilationsrate

e' : Volumenspezifische Eintrittsrate des Radons
in den betreffenden Raum

Unter Gleichgewichtsbedingungen wird die zeitliche Ableitung der Konzentration gleich Null. Es gilt:

$$C_0^i = \frac{e'+v \cdot C_0^a}{\lambda_0 + v} \quad (32)$$

Für den angelagerten und unangelagerten Anteil der Radonfolgeprodukte ergeben sich zwei Differentialgleichungen. In diese fließen die Anlagerungsrate an Aerosole X , die Depositionsrates auf Oberflächen q , die Ventilationsrate v und der Recoilfaktor R ein:

$$\frac{dC_j^{if}}{dt} = v \cdot C_j^{af} + \lambda_j \cdot C_{j-1}^{if} + \lambda_j \cdot R_{j-1} \cdot C_{j-1}^{ia} - (\lambda_j + X + q^f + v) \cdot C_j^{if} \quad (33)$$

$$\frac{dC_j^{ia}}{dt} = v \cdot C_j^{aa} + (1 + R_{j-1}) \cdot \lambda_j \cdot C_{j-1}^{ia} + X \cdot C_j^{if} - (\lambda_j + q^a + v) \cdot C_j^{ia} \quad (34)$$

C_j^f : Aktivitätskonzentration der unangelagerten Folgeprodukte in
der Raumluft

$$j = 1 \rightarrow {}^{218}\text{Po}$$

$$j = 2 \rightarrow {}^{214}\text{Pb}$$

$$j = 3 \rightarrow {}^{214}\text{Bi}$$

C_j^{af} : Aktivitätskonzentration der unangelagerten Folgeprodukte in
der Außenluft

C_j^a : Aktivitätskonzentration der an Aerosolen angelagerten Folgeprodukte
in Raumluft

C_j^{aa} : Aktivitätskonzentration der an Aerosolen angelagerten Folgeprodukte
in Außenluft

λ_j : Zerfallskonstante des entsprechenden Radonzerfallsproduktes

X : Anlagerungsrate an Aerosole

q^f : Ablagerungsrate der unangelagerten Radonfolgeprodukte

q^a : Ablagerungsrate der angelagerten Radonfolgeprodukte

R_{j-1} : Recoilfaktor des entsprechenden Radionuklids

Unter der Voraussetzung, dass der unangelagerte Anteil der Radonfolgeprodukte der Außenluft durch Ventilationsprozesse bereits beim Eintritt in den Raum abgeschieden wird und unter Gleichgewichtsbedingungen berechnen sich die Aktivitätskonzentrationen der Radonfolgeprodukte zu:

$$C_j^f = \frac{\lambda_j \cdot C_{j-1}^f + R_{j-1} \cdot \lambda_j \cdot C_{j-1}^a}{v + \lambda_j + q^f + X} \quad (35)$$

$$C_j^a = \frac{v \cdot C_j^a + (1 + R_{j-1}) \cdot \lambda_j \cdot C_{j-1}^a + X \cdot C_j^f}{v + \lambda_j + q^a} \quad (36)$$

mit $C_o^f = C_o$ und $C_o^a = 0$

3.2 Modellrechnung zur Bestimmung der geladenen Anteile der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb

Die in diesen Experimenten verwendete Radonkammer hat einen Rauminhalt von 8 m³. Da sich die Parameter der An/Ablagerung in dieser Kammer sich in derselben Größenordnung bewegen wie in gewöhnlichen Räumen (siehe Kapitel 2.4 bis 2.5.2) kann sie in erster Näherung als Raum angesehen werden. So ist es möglich das Modell auf die Vorgänge in ihrem Inneren anzuwenden (siehe Kapitel 4.6 für eine nähere Beschreibung der Kammer). Um die geladenen Anteile der unangelagerten Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb mit Hilfe dieses Modells theoretisch zu bestimmen, muss es für beide Folgeprodukte erweitert werden. Für das erste Radonfolgeprodukt, das ^{218}Po , gilt folgende Differentialgleichung für den unangelagerten Anteil in Raumluft. Es ist dabei zu berücksichtigen, dass sich das Radon, als Edelgas, nicht an Oberflächen anlagert, d.h. der Recoilterm wegfällt:

$$\frac{dC_1^f}{dt} = \lambda_1 \cdot C_0 - S \cdot C_1^f \quad (37a)$$

mit

$$S_1 = \lambda_1 + X + q^f + v \quad (37b)$$

Für den angelagerten Anteil des ^{218}Po lässt sich nachstehende Differentialgleichung aufstellen:

$$\frac{dC_1^a}{dt} = v \cdot C_1^{aa} + X \cdot C_1^f - (\lambda_j + q^a + v) \cdot C_1^a \quad (38)$$

Um den zeitlichen Verlauf des geladenen und neutralen Anteils der unangelagerten Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb zu beschreiben, muss die Neutralisation mit der Rate v , des geladenen Anteils berücksichtigt werden. D.h. im Zeitraum t muss eine Verringerung des geladenen Anteils stattfinden. Mit dieser Verringerung des geladenen Anteils ist eine Zunahme des neutralen Anteils verbunden. Beide Anteile werden durch folgende Gleichungen beschrieben:

$$\frac{dC_{1+}^f}{dt} = CF_0 \cdot \lambda_1 \cdot C_0 - (S_1 + v) \cdot C_{1+}^f \quad (39)$$

$$\frac{dC_{10}^f}{dt} = (1 - CF_0) \cdot \lambda_1 \cdot C_0 - S_1 \cdot C_{10}^f + v \cdot C_{1+}^f \quad (40)$$

C_{1+}^f : Positiv geladener unangelagerter Anteil des ^{218}Po

C_{10}^f : Neutraler unangelagerter Anteil des ^{218}Po

CF_0 : Anteil des geladenen unangelagerten ^{218}Po nach seiner Entstehung durch den Radonzerfall

S_1 : Anlagerungsparameter

Unter Gleichgewichtsbedingungen, d.h. $\frac{dC_j^f}{dt} = 0$ ergibt sich damit die Konzentration des geladenen und neutralen unangelagerten Anteils des ^{218}Po wie folgt:

$$C_{1+}^f = \frac{CF_0 \cdot \lambda_1 \cdot C_0}{S_1 + v} \quad (41)$$

$$C_{10}^f = \frac{(1 - CF_0) \cdot \lambda_1 \cdot C_0 + v \cdot C_{1+}^f}{S_1} \quad (42)$$

Für den geladenen Anteil des ^{218}Po in der Raumluft gilt dann:

$$\begin{aligned} CF^f &= \frac{C_{1+}^f}{C_1^f} = \frac{C_{1+}^f}{C_{1+}^f + C_{10}^f} \\ &= \frac{CF_0 \cdot \lambda_1 \cdot C_0}{S_1 + v} \cdot \frac{S_1}{\lambda_1 \cdot C_0} \\ &= CF_0 \cdot \frac{S_1}{S_1 + v} \end{aligned} \quad (43)$$

Neben der direkten Messung der einzelnen Anlagerungsparameter X , q^f und der Ventilationsrate lässt sich S_1 auch aus dem Verhältnis der Radongaskonzentration zum unangelagerten Anteil des ^{218}Po bestimmen. Es gilt:

$$S_1 = \lambda_1 \cdot \frac{C_0}{C_1^f} \quad (44)$$

Zur Berechnung des freien und des angelagerten Anteils des ^{214}Pb geht man ähnlich vor:

$$\frac{dC_2^f}{dt} = \lambda_2 \cdot C_1^f + \lambda_2 \cdot R_1 \cdot C_1^a - S_2 \cdot C_2^f \quad (45)$$

$$S_2 = \lambda_2 + X + q^f + v = S_1 - \lambda_1 + \lambda_2 \quad (46)$$

$$\frac{dC_2^a}{dt} = v \cdot C_2^{aa} + (1 + R_1) \cdot \lambda_2 \cdot C_1^a + X \cdot C_2^f - (\lambda_2 + q^a + v) \cdot C_2^a \quad (47)$$

Zur Berechnung des geladenen unangelagerten Anteils des ^{214}Pb führt folgender Ansatz:

$$\frac{dC_{2+}^f}{dt} = CF_{20} \cdot (\lambda_2 \cdot C_{10}^f + \lambda_2 \cdot R_1 \cdot C_1^a) + \lambda_2 \cdot C_{1+}^f - (S_2 + v_2) \cdot C_{2+}^f \quad (48)$$

Zur weiteren Berechnung des geladenen Anteils des ^{214}Pb , ist es auch hier erforderlich, von Gleichgewichtsbedingungen, d.h. von $\frac{dC_j^f}{dt} = 0$ auszugehen. Auf diese Weise erhält man für den gesamten unangelagerten Anteil des ^{214}Pb :

$$C_2^f = \frac{\lambda_2 \cdot C_1^f + \lambda_2 \cdot R_1 \cdot C_1^a}{S_2} \quad (49)$$

Für den geladenen unangelagerten Anteil des Radonfolgeprodukts ^{214}Pb gilt dann:

$$C_{2+}^f = \frac{CF_{20} \cdot (\lambda_2 \cdot C_{10}^f + \lambda_2 \cdot R_1 \cdot C_1^a) + \lambda_2 \cdot C_{1+}^f}{S_2 + v_2} \quad (50)$$

Damit folgt für den geladenen Anteil des ^{214}Pb unter Gleichgewichtsbedingungen in Raumluft:

$$\begin{aligned} CF_2 &= \frac{C_{2+}^f}{C_2^f} \\ &= \frac{CF_{20} \cdot (\lambda_2 \cdot C_{10}^f + \lambda_2 \cdot R_1 \cdot C_1^a) + \lambda_2 \cdot C_{1+}^f}{S_2 + v} \cdot \frac{S_2}{\lambda_2 \cdot C_1^f + \lambda_2 \cdot R_1 \cdot C_1^a} \quad (51a-c) \\ &= \frac{S_2}{S_2 + v_2} \cdot \left(\frac{CF_{20} \cdot (C_{10}^f + R_1 \cdot C_1^a) + C_{1+}^f}{C_1^f + R_1 \cdot C_1^a} \right) \end{aligned}$$

Geht man weiterhin davon aus, dass der geladene Anteil des unangelagerten ^{214}Pb unmittelbar nach dem Zerfall des ^{218}Po in derselben Größenordnung liegt wie der des unangelagerten ^{218}Po und es denselben Neutralisationsmechanismen unterliegt, d.h. $CF_{20}=CF_0$ und $v_2=v$ so stellt sich der geladene Anteil des ^{214}Pb folgendermaßen dar:

$$CF_2 = \frac{S_1 - \lambda_1 + \lambda_2}{(S_1 - \lambda_1 + \lambda_2) + v} \cdot \left(\frac{CF_0 \cdot (C_{10}^f + R_1 \cdot C_1^a) + C_{1+}^f}{C_1^f + R_1 \cdot C_1^a} \right) \quad (52)$$

Direktes Einsetzen der Gleichungen für C_{10}^f , C_1^f , C_{1+}^f und C_1^a liefert Gleichung (53):

$$CF_2 = \frac{S_1 - \lambda_1 + \lambda_2}{(S_1 - \lambda_1 + \lambda_2) + v} \cdot \left(\frac{CF_0 \cdot \left(\frac{\lambda_1 \cdot C_0}{S_1} \left((1 - CF_0) + CF_0 \cdot \frac{v_1}{S_1 + v_1} \right) + R_1 \cdot \frac{\lambda_1 \cdot C_0}{S_1} \cdot \frac{X}{\lambda_1 + q^a + v} \right) + \frac{CF_0 \cdot \lambda_1 \cdot C_0}{S_1 + v_1}}{\left(\frac{\lambda_1 \cdot C_0}{S_1} + R_1 \cdot \frac{\lambda_1 \cdot C_0}{S_1} \cdot \frac{X}{\lambda_1 + q^a + v} \right)} \right) \quad (53)$$

$$= CF_0 \cdot \frac{S_1 - \lambda_1 + \lambda_2}{(S_1 - \lambda_1 + \lambda_2) + v} \cdot \left(\frac{1 + S_1 \cdot \frac{1 - CF_0}{S_1 + v_1} + R_1 \cdot \frac{X}{\lambda_1 + q^a + v}}{\left(1 + R_1 \cdot \frac{X}{\lambda_1 + q^a + v} \right)} \right)$$

In erster Näherung sind q^a (Werte im Bereich $0,1 \text{ h}^{-1}$ bis $0,2 \text{ h}^{-1}$) und v (unter $0,5 \text{ h}^{-1}$) vernachlässigbar gegenüber λ_1 (mit $13,64 \text{ h}^{-1}$) [Porstendörfer 1994].

Um eine erste Vorstellung von der Größenordnung des geladenen Anteils des unangelagerten ^{218}Po zu erhalten, wurden unter Bedingungen wie sie typischerweise in Räumen anzutreffen sind erste Modellrechnungen durchgeführt. Mithilfe der von Dankelmann [1998] gemessenen Neutralisationsraten bei unterschiedlichen Feuchten (siehe Tabelle 2) wurde in einem ersten Schritt der geladene Anteil des unangelagerten ^{218}Po für Radongaskonzentrationen im Bereich von $0 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ bis $5000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ bei vier verschiedenen Feuchten und einer Anlagerungsrate $X = 40 \text{ h}^{-1}$ berechnet. Unter Annahme eines Abreicherungsverhältnisses zwischen dem Radon und seinen Folgeprodukten von $C_0:C_1:C_3 = 1:0,8:0,4$ [Porstendörfer 2001] ergeben sich, unter Berücksichtigung einer Hintergrundstrahlung von $25,4 \cdot 10^{-10} \text{ C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h})^{-1}$, Ionendosisleistungen für den gewählten Radongaskonzentrationsbereich bis $12000 \cdot 10^{-10} \text{ C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h})^{-1}$ (siehe Kapitel 4.6.5). Der anfänglich geladene Anteil des ^{218}Po beträgt $CF_1 = 0,88$ [Wellisch 1913]. Die Ergebnisse dieser Modellrechnungen sind in der Abbildung 3 graphisch dargestellt. Unter den gewählten Bedingungen zeigen die Rechnungen, dass bei einer Feuchte von 3,3 % r.H. 40 % bis 70 %, bei einer Feuchte von 15 % r.H. 16 % bis 58 %, bei 30 % r.H. 13 % bis 54 % und bei einer Feuchte von 90 % r.H., 11 % bis 52 % des unangelagerten ^{218}Po positiv geladen wären. Betrachtet man sich den Zuwachs der Neutralisation aufgrund des Zuwachses der Wasserdampfkonzentration, so stellt man fest, dass der größte Zuwachs bis zu einem Bereich von etwa 30 % r.H. stattfindet. Oberhalb von 30 % r.H. ist dieser Zuwachs nur noch minimal.

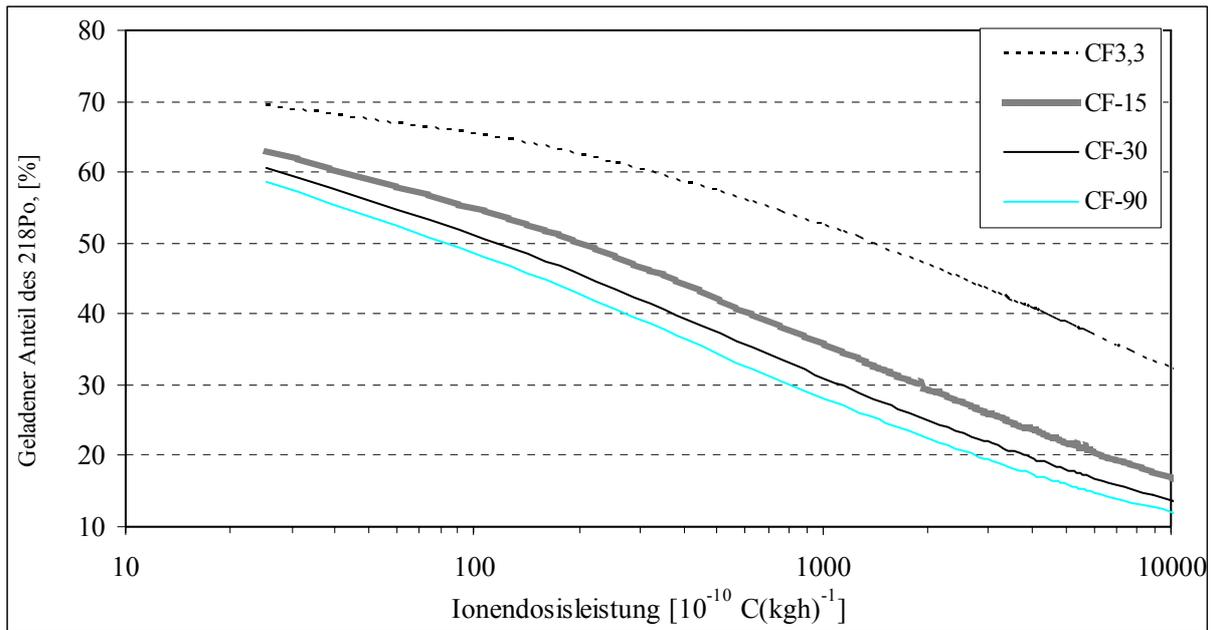


Abbildung 3: Geladener Anteil CF des unangelagerten ^{218}Po bei den Luftfeuchten 3,3 %, 15 % 30 % und 90 % und Radongaskonzentrationen im Bereich von $150 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $3000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$

Im zweiten Schritt wurde sowohl der geladenen Anteil des unangelagerten ^{218}Po , als auch der geladene Anteil des unangelagerten ^{214}Pb in einem Feuchtebereich von 30 % bis 90 % bei vier Radongaskonzentrationen berechnet. Dabei wird gemäß den gewonnenen Erkenntnis von einem mittleren Zuwachs in der Neutralisationsrate aufgrund des erhöhten Wasserdampfgehaltes von $\frac{\Delta v_{\text{OH}}}{\Delta I^{0.5}} = 1.7 \cdot 10^{-3} \frac{\text{s}^{-1}}{(\text{C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h})^{-1})^{0.5}}$ ausgegangen. Die An-

lagerungsrate an Aerosole soll $X = 40 \text{ h}^{-1}$, die Ablagerungsrate des unangelagerten Anteils der Radonfolgeprodukte soll $q^f = 20 \text{ h}^{-1}$ und die Ventilationsrate $v = 0,5 \text{ h}^{-1}$. Zur Modellierung des geladenen Anteils des ^{214}Pb muss zusätzlich noch davon ausgegangen werden, dass $\text{CF}_1 = \text{CF}_2$ ist. Die Ergebnisse dieser Modellrechnungen sind in Tabelle 3 zusammengefasst. Im angegebenen Feuchtebereich sind bei einer Radongaskonzentration von $10 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 55,3 % des unangelagerten ^{218}Po geladen mit der Zunahme der Radongaskonzentration, d.h. der Zunahme der Ionendosisleistung sinkt dieser Wert auf 16,7 % bei einer Radongaskonzentration von $3000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. Der geladene Anteil des unangelagerten ^{214}Pb liegt nur unwesentlich unter dem des ^{218}Po . Auch er sinkt von 53 % bei einer Radongaskonzentration von $10 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ auf 14 % bei einer Radongaskonzentration von $3000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und zeigt somit dasselbe Neutralisationsverhalten. Geht man von einer mittleren Konzentration von $50 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ Radon in den Häusern aus [Porstendörfer 1994], so ist ein geladener Anteil von etwa 48 % für das unangelagerte ^{218}Po und von 45 % für das unangelagerte ^{214}Pb zu erwarten.

Tabelle 3: Geladener Anteil des ^{218}Po und des ^{214}Pb unter Umweltbedingungen in Innenräumen. Modellierte Werte auf Grundlage folgender Annahmen: $X = 40 \text{ h}^{-1}$, $q^f = 20 \text{ h}^{-1}$, $v = 0,5 \text{ h}^{-1}$, $R_1 = 0,5$ $\text{CF}_{10} = \text{CF}_{20}$ und $v_1 = v_2$

I_γ [$10^{-10}(\text{kg h})^{-1}$]	RADON			THORON	I_g [$10^{-10} \text{ C}(\text{kg h})^{-1}$]	v [h^{-1}]	CF_1 [%]	CF_2 [%]
	C_0 [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	C_1 [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	C_3 [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	C_0/C_1 [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]				
25,4	10	8	4	5	25	43,7	55,3	53
25,4	50	40	20	10	130,8	61,1	48,2	45
25,4	250	200	100	10	487,7	104,2	36,6	34
25,4	3000	2400	1200	100	5534,6	316,9	16,7	14

Um das Verhältnis zwischen dem geladenen Anteil des unangelagerten ^{218}Po und dem geladenen Anteil des unangelagerten ^{214}Pb graphisch darzustellen, wurden beide Anteile bei einer Feuchte von 50 % unter den bereits genannten Bedingungen in Abhängigkeit der Ionendosisleistung berechnet (siehe Abb. 4). Der geladene Anteil des ^{218}Po liegt hier in einem Bereich von 11,7 % bis 59,5 % und der des ^{214}Pb in einem Bereich von 10 % bis 57,8 %. Er liegt also nur unwesentlich unter dem geladenen Anteil des unangelagerten ^{218}Po .

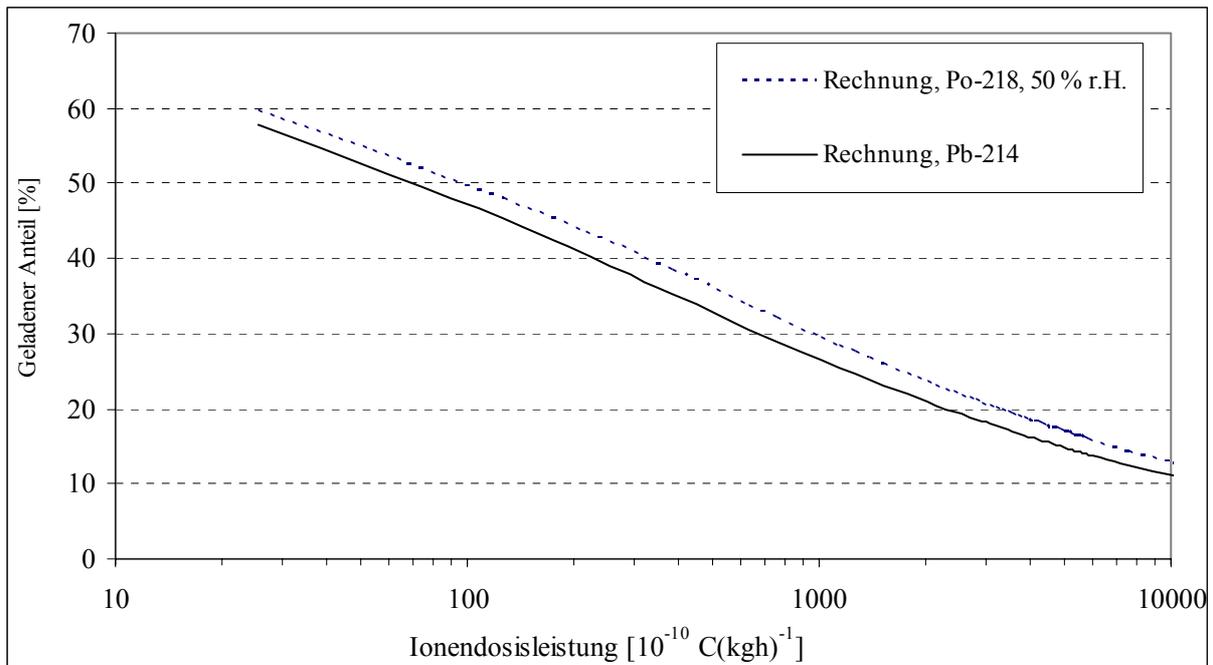


Abbildung 4: Modellierte geladene Anteile der unangelagerten Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb unter Variation der Radongaskonzentration im Bereich von $150 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $3000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bei einer Feuchte von 50 %.

4. Messaufbau und Messverfahren

Der eigentliche Schwerpunkt dieser Dissertation bestand in der experimentellen Bestimmung der geladenen Anteile der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb und darüber hinaus im Bau eines Mobilitätsspektrometers zur Bestimmung der Verteilung elektrischer Beweglichkeit des unangelagerten ^{218}Po . Alle Messungen sollten dabei unter Raumlufbedingungen, d.h. Radongaskonzentrationen von $10 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $5000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, Feuchtebereiche von 15 % bis 95 % (bei konstanter Temperatur) und unter Anwesenheit von Aerosolen, stattfinden. Um die gesuchten geladenen Anteile der unangelagerten Radonfolgeprodukte bzw. das elektrische Mobilitätsspektrum des unangelagerten ^{218}Po zu messen müssen zwei Separationsschritte durchgeführt werden:

1. Die Trennung des geladenen vom neutralen Anteils der Folgeprodukte bzw. darüber hinaus die fraktionierte Abscheidung von vorhandenen Mobilitätsgruppen des geladenen unangelagerten ^{218}Po in elektrischen Feldern. Zur Abscheidung des geladenen Anteils wurde ein Zylinderkondensator verwendet (siehe Kapitel 4.2), zur Abscheidung der Mobilitätsgruppen ein radialer Plattenkondensator (siehe Kapitel 4.7).
2. Die Trennung des angelagerten vom unangelagerten Folgeprodukt. Diese wurde über die Diffusionsabscheidung an einem Drahtgitternetz (Screen) bei laminarer Strömung erreicht (siehe Kapitel 4.2).

Um auch bei niedrigen Konzentrationen des Radons und seiner Folgeprodukte eine ausreichende Messgenauigkeit zu erzielen ist es erforderlich kontinuierlich zu messen. Es wurde daher ein Online-Messsystem entwickelt (siehe ebenfalls Kapitel 4.2). In den folgenden Kapiteln werden zuerst die theoretischen Grundlagen, der Aufbau und die Messverfahren zur Bestimmung des geladenen Anteils der unangelagerten Folgeprodukte unter Raumlufbedingungen und im Anschluss daran Theorie, Aufbau und Testmessungen des Beweglichkeitsspektrometers beschrieben.

4.1 Definition der Penetration

Zur direkten Messung des unangelagerten Anteils der Radonzerfallsprodukte wird deren hohe Eigenbeweglichkeit ausgenutzt. Die Trennung der unangelagerten von den an Aerosolen angelagerten Folgeprodukten erfolgt über so genannte Diffusionsbatterien. Diese bestehen aus zylindrischen Röhren oder Drahtgitternetzen (englisch: Screens). Da sich der Diffusionskoeffizient umgekehrt proportional zum Teilchendurchmesser verhält, werden bei laminarer Gasströmung die sehr kleinen freien Zerfallscluster (kleiner 5 nm) an den Oberflächen der Diffusionsbatterien durch Diffusion abgeschieden. Die größeren und damit trägeren Teilchen werden hingegen mit der laminaren Strömung des Trägergases aus dem Abscheidevolumen hinausgetragen. Diesen Vorgang nutzt man demzufolge zur Trennung von Größenfraktionen oder auch zur Bestimmung des Diffusionskoeffizienten und damit der Beweglichkeit der Teilchen. Um das Verhältnis der Teilchenkonzentration vor und nach der Diffusionsbatterie zu beschreiben, definiert man die Penetration P:

$$P = C/C_0 \quad (54)$$

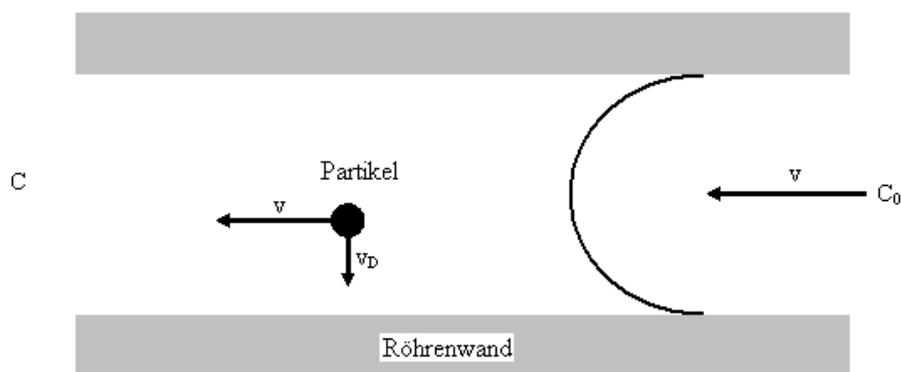
- P : Penetration
- C : Partikelkonzentration vor Passieren der Diffusionsbatterie
- C₀ : Partikelkonzentration nach Passieren der Röhre

Die Penetration entspricht also der Wahrscheinlichkeit für ein Teilchen des Durchmessers d_p durch eine Diffusionsbatterie zu gelangen. Wird P gleich null, so werden die entsprechenden Teilchen alle abgeschieden. Wird P gleich eins, so gelangen die Teilchen alle durch die Diffusionsbatterie. Darum wird als charakteristischer Wert für Diffusionsbatterien der 50 % Cut-Off d_{50} angegeben. Dieser Wert entspricht demjenigen Teilchendurchmesser, bei dem 50 % aller Teilchen in der Diffusionsbatterie abgeschieden werden.

4.2 Trennkondensator

4.2.1 Anlagerung von Radonfolgeprodukten in Röhren

Zur Abscheidung des geladenen Anteils der unangelagerten Folgeprodukte wurde ein Zylinderkondensator verwendet. Um seine Dimensionen zu optimieren mussten die Abscheideverluste aufgrund von Diffusion an die Röhreninnenwände berechnet werden. Bei einer laminaren Strömung mit der Durchflussrate v [$\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$] durch eine zylindrische Röhre der Länge L (siehe Abb. 5) gelten die durch Gormley und Kennedy [1949] und Sonderholm [1979] aufgestellten Gleichungen für die Penetrationsfunktion:



- C_0 : Partikelkonzentration in der Luft
- C : Partikelkonzentration nach Passieren der Röhre
- v : Durchflussrate
- v_D : Geschwindigkeitskomponente aufgrund der Diffusion D des Partikels

Abbildung 5: Schematische Darstellung der Diffusionsabscheidung bei laminarer Strömung durch eine Röhre

für $\Delta < 7,22 \cdot 10^{-3}$

$$P = 1 - 5,499 \cdot \Delta^{2/3} + 3,77 \cdot \Delta + 0,813 \cdot \Delta^{4/3} \quad (55)$$

für $\Delta > 7,22 \cdot 10^{-3}$

$$P = 0,819 \cdot e^{-11,488\Delta} + 0,097 \cdot e^{-70,072\Delta} + 0,0325 \cdot e^{-178,95\Delta} + 0,0154 \cdot e^{-338,1\Delta} \quad (56)$$

$$\Delta \quad := D \cdot L \cdot v^{-1}$$

v : Durchflussrate

L : Länge des Rohres

Die Penetration ist hier also abhängig vom Diffusionskoeffizienten D, der Länge L der Röhre und der Durchflussrate v. Dies bedeutet, dass bei gleich bleibender Durchflussrate v_0 der 50 % Cut-off mit größer werdender Röhrenlänge zu größerem Teilchendurchmesser verschoben wird, also insgesamt mehr Teilchen an den Röhrenwänden abgeschieden werden (siehe Abb. 6).

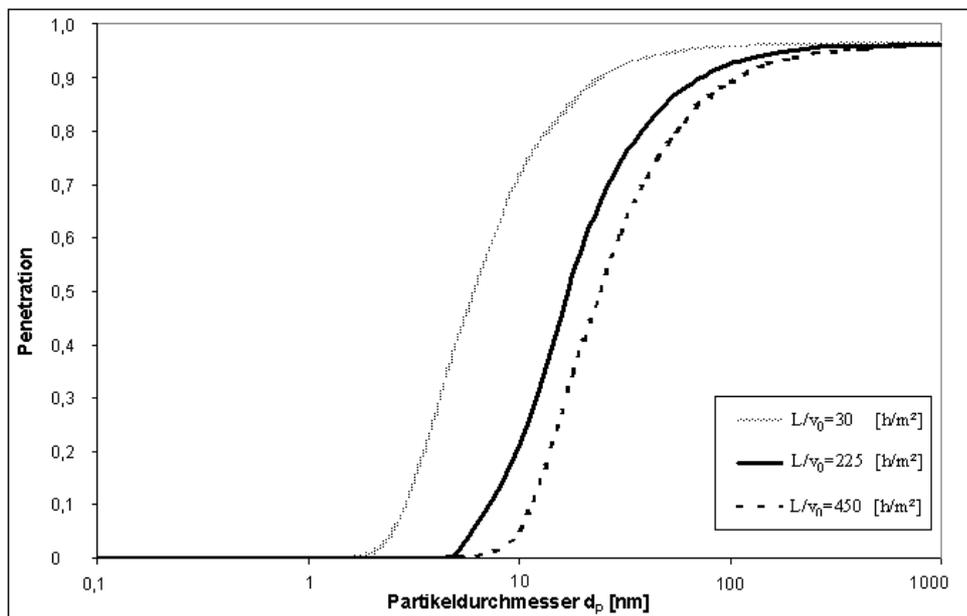


Abbildung 6: Penetrationskurve einer Röhre mit der Länge 6 cm bei drei verschiedene Durchsätzen

4.2.2 Aufbau des Trennkondensators

Bei der Planung und dem Bau der Trennkondensatoreinheiten sollten folgende Bedingungen erfüllt werden:

- Damit Neutralisation und Folgeproduktneubildung im Volumen des Kondensators vernachlässigbar werden, musste die Aufenthaltsdauer der zu untersuchenden Luft in diesem minimal sein.

- Die Verluste durch Diffusionsabscheidung auf den Kondensatorinnenwänden sollen minimal sein.
- Alle geladenen unangelagerten Radonfolgeprodukte sollen im Kondensator abgeschieden werden.

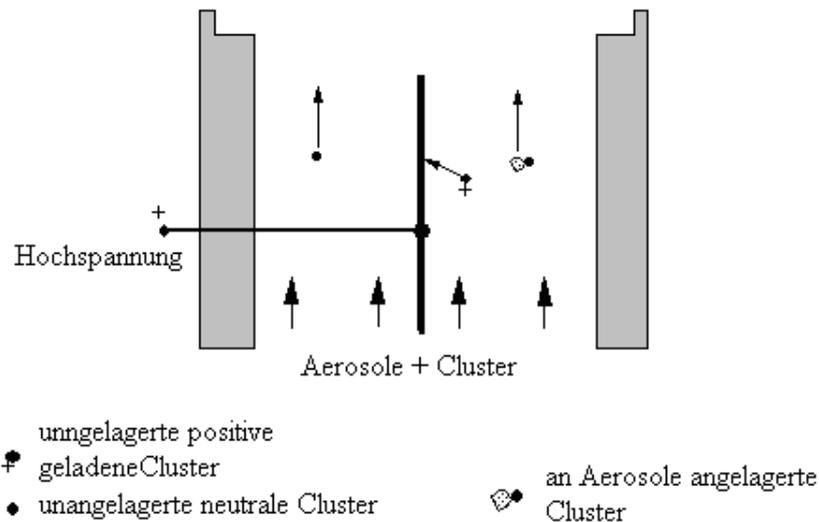


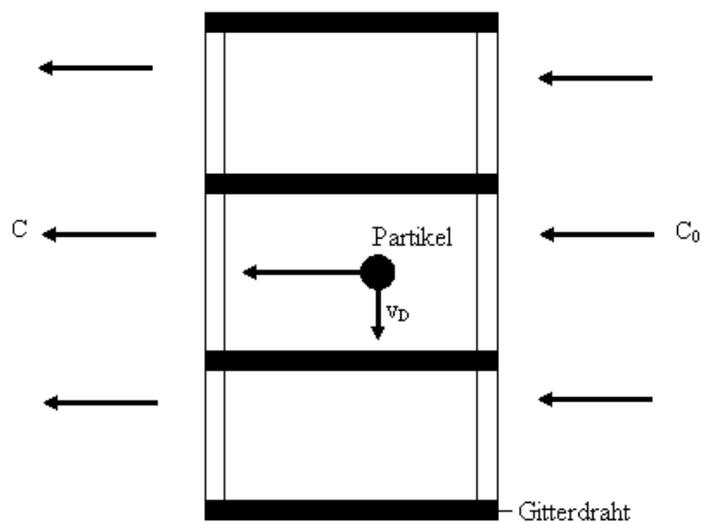
Abbildung 7: Aufbau des Trennkondensators

Der Gasvolumenstrom selbst wurde durch die Abscheidecharakteristik des in der Online-Backscreen-Technik (OBST) verwendeten Drahtgitternetzes vorgegeben. Gemäß den Gleichungen (55) und (56) wurde die Länge des Trennkondensators berechnet und die Abscheidung durch Diffusion von Teilchen mit einem Durchmesser von 0,75 nm berechnet. Der Trennkondensator besteht aus einer 6,5 cm langen Aluminiumröhre mit einem Innendurchmesser von 3,5 cm. Die Länge des, aus Wolfram bestehenden Kondensatordrahtes beträgt 5 cm (siehe Abb. 7). Bei dem vorgegebenen Durchsatz von $11 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ beträgt der Verlust durch die diffusive Abscheidung auf der Innenwand des Trennkondensators 6 %. Die mittlere Aufenthaltsdauer im Kondensator beträgt bei dem oben genannten Durchsatz, 1,4 s. Die mittlere Zeit bis zur Neutralisation beträgt $\tau^{-1} = (15 \pm 2) \text{ s}$ [Dankelmann, 1998]. Damit ist die mittlere Aufenthaltsdauer kleiner als der angegebene Fehler, welcher bei der Bestimmung der mittleren Zeit bis zur Neutralisation gemacht wurde.

4.3 Online-Back-Screen-Technik (OBST)

4.3.1 Anlagerung auf Drahtgitternetzen

Die Trennung von unangelernten und angelernten Radonfolgeprodukten erfolgte über die Diffusionsabscheidung an einem Drahtgitternetz (Screen). Fließt ein laminarer Luftstrom mit der Flächengeschwindigkeit v_0 durch ein Drahtgitter (siehe Abb. 8), d.h. für Reynoldszahlen kleiner als eins, so gilt für die Penetration folgende durch Cheng und Yeh [1980] aufgestellte Gleichung:



- C_0 : Partikelkonzentration in der Luft
- C : Partikelkonzentration nach Passieren des Gitters
- v_0 : Flächengeschwindigkeit
- v_D : Geschwindigkeitskomponente aufgrund der Diffusion D des Partikels

Abbildung 8: Schematische Darstellung zur Diffusionsabscheidung auf einem Drahtgitternetz

$$P = \exp \left[-G \cdot \frac{4 \cdot \alpha \cdot b_n}{\pi \cdot (1 - \alpha) \cdot d_f} \cdot \varepsilon \right] \quad (57)$$

- d_f : Drahtdurchmesser
- G : Anzahl der Drahtgitternetze

- b_n : Dicke des Drahtgitternetzes
 α : feste Fraktion des Drahtgitternetzes
 $\alpha = 4 \cdot m_n / (\pi \cdot b_n^3 \rho_f)$
 ρ_f : spezifische Dichte des Drahtmaterials
 ε : Abscheidungswirkungsgrad

Der Abscheidungswirkungsgrad des Drahtgitternetzes setzt sich zusammen als Summe der Wirkungsgrade für die verschiedenen Abscheidungsmechanismen. Es existieren die Abscheidung durch Diffusion ε_D , durch Abfang ε_{IN} , durch Impaktion ε_{IM} und durch den diffusiven Abfang ε_{ID} .

$$\varepsilon = \varepsilon_D + \varepsilon_{IN} + \varepsilon_{IM} + \varepsilon_{ID} \quad (58)$$

Für Partikel welche kleiner als 20 nm sind erfolgt die Abscheidung auf einem Drahtgitternetz allein über die Diffusion:

$$\varepsilon = \varepsilon_D = 2,7 \cdot Pe^{-2/3} \quad (59)$$

mit

$$Pe = d_f \cdot v_0 \cdot D^{-1} \quad (60)$$

Pe : Pecletzahl

D.h. die Penetration ist abhängig vom Diffusionskoeffizienten der Teilchen, der Flächengeschwindigkeit des Luftstroms und den Gitternetzparametern, wie Drahtdicke, Netzhöhe, Dichte etc. In Abbildung 9 ist die Penetrationskurve für ein Drahtnetz mit einem d_{50} von 3,5 nm bei 11 l·min⁻¹ in Abhängigkeit der Partikelgröße und unter Berücksichtigung aller Abscheidungsmechanismen dargestellt. Man erkennt deutlich, dass ab einem Teilchendurchmesser von über 900 nm erneut eine Abscheidung auf dem Drahtgitter erfolgt. Da die Aerosolkonzentration in diesen Experimenten jedoch sehr gering war (im Bereich von 1000 Partikeln pro cm³) und durch die gleichzeitige Messung des gesamten unangelernten und des neutralen unangelernten Anteils der Radonfolgeprodukte, ist der so entstehende

Fehler durch die zusätzliche Abscheidung der großen Aerosolpartikel auf dem Drahtgitter vernachlässigbar klein ($< 0,5 \%$). Bei Messung an der Außenluft und bei höheren Aerosolkonzentrationen bedeutet diese zusätzliche Abscheidung der an Aerosolen angelagerten Folgeprodukte jedoch, dass bei der Bestimmung des freien Anteils der Radonfolgeprodukte eine Korrektur durchgeführt werden muss. Dabei geht man davon aus, dass in der Außenluft kein unangelagertes ^{214}Po vorhanden ist und dass sich eine gleichmäßige Verteilung für das Größenspektrum der an Aerosole gebundenen Folgeprodukte ergibt. Damit ist die auf einem Drahtgitternetz abgeschiedene ^{214}Po -Konzentration allein durch die abgeschiedenen Aerosole gegeben. Dies bedeutet für die gesamte Aerosolgebundene ^{214}Po -Konzentration:

$$c_{\text{aero}}(^{214}\text{Po}) = c_{\text{Filter}}(^{214}\text{Po}) + c_{\text{Screen}}(^{214}\text{Po}) \quad (61)$$

- $c_{\text{aero}}(^{214}\text{Po})$: gesamte Aerosolgebundene ^{214}Po -Konzentration
- $c_{\text{Filter}}(^{214}\text{Po})$: auf dem Filter abgeschiedene ^{214}Po -Konzentration
- $c_{\text{Screen}}(^{214}\text{Po})$: auf dem Drahtgitternetz abgeschiedene ^{214}Po -Konzentration

Für den Korrekturfaktor α_K gilt:

$$\alpha_K = \frac{c_{\text{Screen}}(^{214}\text{Po})}{c_{\text{aero}}(^{214}\text{Po})} \quad (62)$$

α_K : Korrekturfaktor für den Anteil der auf dem Screen abgeschiedenen Aerosole

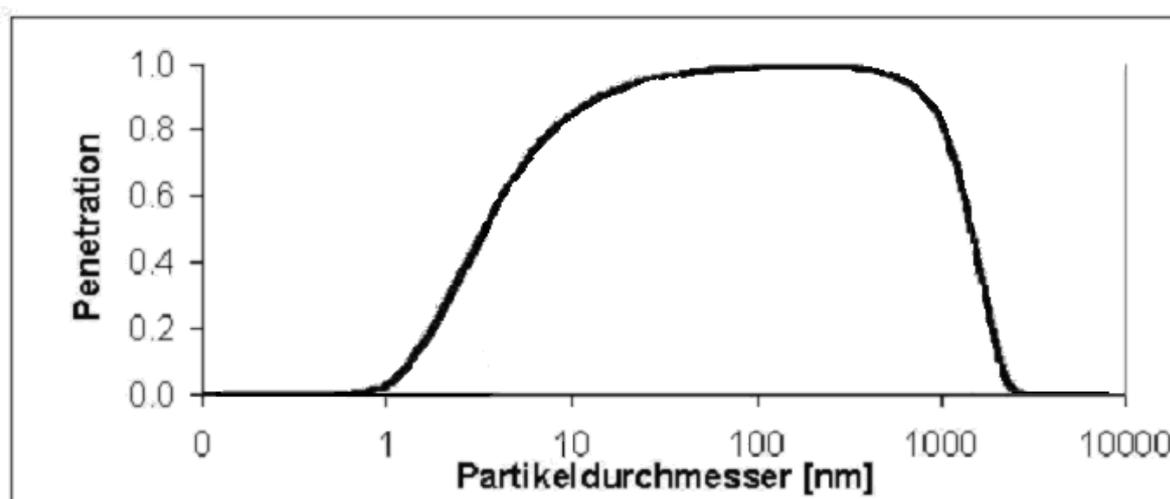


Abbildung 9: Penetrationskurve des verwendeten Drahtgitternetzes bei einer Durchsatzrate von $11 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$

4.3.2 Aufbau der OBST

Zur Messung des unangelagerten Anteils der Radonfolgeprodukte wurde die Online-Back-Screen-Technik, im Folgenden als OBST bezeichnet, entwickelt. Die zu untersuchende Luft wird durch ein Drahtgitternetz an einem Halbleiterdetektor vorbei gesaugt (siehe Abb. 10). Die Abscheidung der unangelagerten Radonfolgeprodukte auf dem Drahtgitter soll allein aufgrund von Diffusion erfolgen. Deshalb muss die Luftströmung laminar sein.

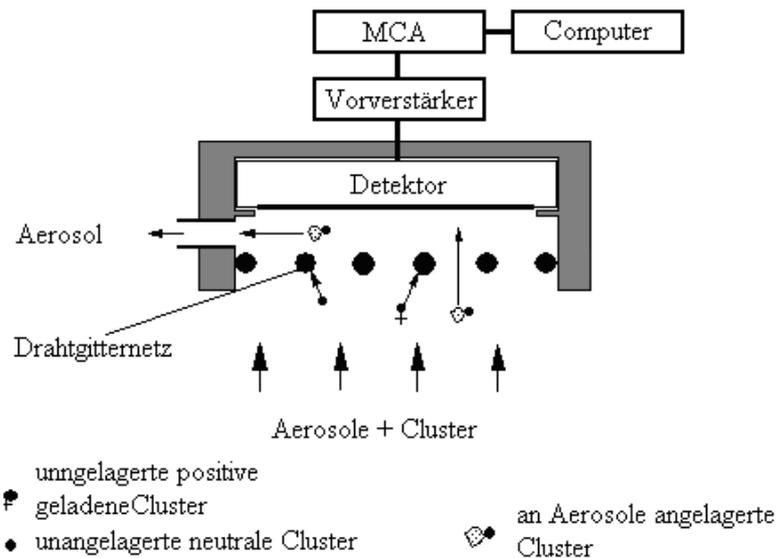


Abbildung 10: Schematischer Aufbau der Online-Back-Screen-Technik

Das verwendete Drahtgitter hat die in Tabelle 4 aufgeführten Eigenschaften. Nach den Berechnungen gemäß Formel (57) besitzt es damit, bei einer Strömungsrate von $11 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, einen 50 % Cut-off von 3,5 nm. Damit werden alle gesuchten unangelagerten Folgeprodukte auf dem Drahtgitter abgeschieden.

Tabelle 4: Parameter des Drahtgitternetzes (Screen)

Masse [g]	Höhe [cm]	Durchmesser des Screens [cm]	Drahtdichte [g·cm ⁻³]	Drahtdurchmesser [cm]
0,0487	0,005	2	7,9	0,0025

Die Messeffizienz des OBST wurde durch Vergleichsmessungen mit einem kalibrierten On-Screen-Messsystem in mehreren Messdurchgängen bestimmt. Daraus ergibt sich für die beiden OBST-Messköpfe die in der Tabelle 5 dargestellte Effizienz samt Standardabweichungen.

Tabelle 5: Backscreenwirkungsgrad der beiden OBST-Einheiten

Messeinheit	Wirkungsgrad [%]
OBST-1	$4,9 \pm 0,4$
OBST-2	$5,1 \pm 0,3$

Die Energieauflösung der OBST ist in Abbildung 11 dargestellt. Die Energieauflösung beträgt für ^{218}Po $\Delta E/E = (9,2 \pm 0,5) \%$ und für das ^{214}Po $\Delta E/E = (5,9 \pm 0,4) \%$. Beide Nuklide lassen sich spektrometrisch trennen und bestimmen.

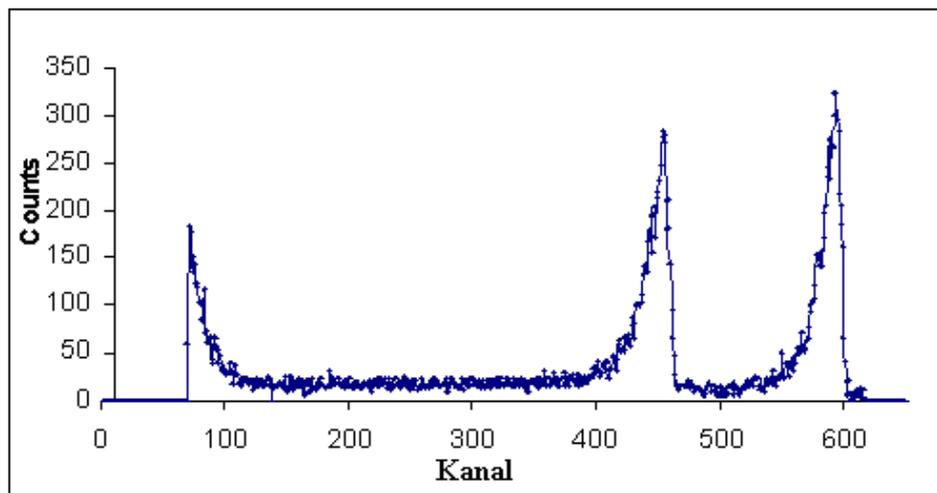


Abbildung 11: Spektrum aufgenommen mit der OBST

4.4 Vorbereitende Messungen

Im Vorfeld der eigentlichen Messungen zum geladenen Anteil der unangelagerten Radonfolgeprodukte war es erforderlich, verschiedene Messungen durchzuführen:

- Vergleichsmessung zwischen zwei Messeinheiten, bestehend aus OBST und Trennkondensator:

Da im späteren Experiment zwei baugleiche Messeinheiten (siehe Abb. 14) gleichzeitig und unter denselben Bedingungen betrieben werden sollten (siehe Kapitel

4.5), musste bestimmt werden, ob eine Korrektur in der Zählrate aufgrund der unterschiedlichen Messeffizienzen der beiden OBST-Messköpfe 1 und 2 durchzuführen ist. Dazu wurden beide Einheiten bei einer konstanten Radongaskonzentration simultan ohne angelegte Spannung betrieben. Es wurden 15 Onlinemessungen mit einer Messdauer von je 15 Minuten mit einer anschließenden Wartephase von je 30 Minuten pro Messung durchgeführt. Der Fehler der Messung ergibt sich aus dem statistischen Fehler der Zählraten. Die aus den Messungen gebildeten Mittelwerte sind in Tabelle 6 wiedergegeben. Der resultierende Korrekturfaktor ist vernachlässigbar klein.

Tabelle 6: Vergleichsmessung zwischen OBST-1 und OBST-2

OBST-1	(35±3) cps
OBST-2	(37±3) cps

- Bestimmung der Abscheidespannung:

Um diejenige, am Kondensator anzulegende Spannung, zu ermitteln, bei welcher alle geladenen unangelagerten Radonzerfallsprodukt am Kondensatordraht des Trennkondensators abgeschieden werden, wurden bei einer konstanten ^{222}Rn -Radongaskonzentration von $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ beide Messeinheiten simultan betrieben. Am Trennkondensator der einen Einheit wurde eine variable Spannung im Bereich von 0 V bis 300 V angelegt, so dass am zugehörigen OBST-Messkopf bei ansteigender Spannung schließlich nur noch der neutrale Anteil der unangelagerten Folgeprodukte gemessen wurde. An der anderen Messeinheit wurde keine Spannung an den Trennkondensator angelegt, so dass hier der gesamte unangelagerte Anteil der Radonfolgeprodukte auf dem Drahtgitter der OBST abgeschieden und damit gemessen wurde (siehe Abb. 14). Aus dem direkten Vergleich der beiden Onlinemessungen ergibt sich der nicht abgeschiedene geladene unangelagerte Anteil des ^{218}Po . Die Durchsatzrate betrug $11 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ pro Messeinheit. Die relative Feuchte der Laborluft in der Radonkammer betrug 32 % bei 20° C . Es wurden pro angelegte Spannung 5 Onlinemessungen mit einer Dauer von je 20 Minuten und einer anschließenden Wartephase von je 30 Minuten durchgeführt. Aus den jeweils 5 Einzelmessungen wurde ein Mittelwert gebildet. Die Messungenauigkeit ergibt sich aus dem statistischen Fehler der Zählraten. In Abbildung 12 wurden diese Mittelwerte der Messungen des nicht abgeschiedenen unangelagerten Anteils des ^{218}Po in Abhängigkeit der am Trennkondensator angelegten Spannung aufgetragen. Aus dem Experiment wurde ersichtlich, dass bereits bei einer angelegten Spannung von ca. 50

V, der komplette Anteil des geladenen unangelagerten ^{218}Po abgeschieden wird. Für die weiteren Experimente wurde am Trennkondensator eine Spannung von 1 kV angelegt.

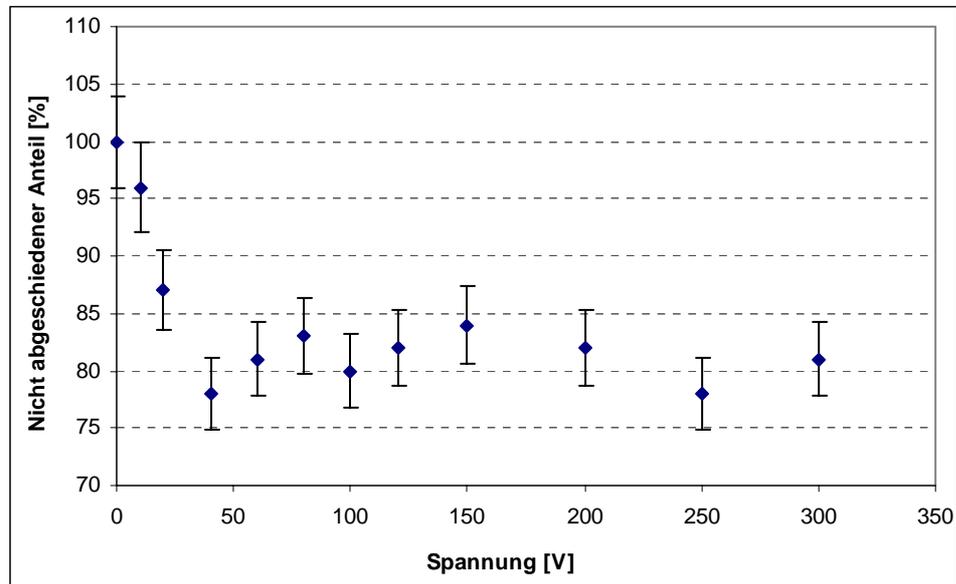


Abbildung 12: Anteil des nicht am Trennkondensator abgeschiedenen Anteils des geladenen unangelagerten ^{218}Po in Abhängigkeit der am Kondensator angelegten Spannung

- Bestimmung der Penetration durch die Trennkondensatoren:

Zur Bestimmung der Penetration durch die Trennkondensatoren wurde bei einer festen Radongaskonzentration von $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, ein OBST-Messkopf und eine komplette Messeinheit simultan betrieben (siehe Abb. 13). Aus dem direkten Vergleich der beiden Onlinemessungen ergibt sich die Penetration P. Damit lässt sich das diffusive Abscheideverhalten der unangelagerten Radonfolgeprodukte in den Trennkondensatoren überprüfen. Es wurden jeweils 5 Onlinemessungen mit einer Dauer von je 20 Minuten und anschließender Wartephase von 30 Minuten durchgeführt. Um zu überprüfen, ob die Oxidation der Aluminiumoberfläche der Trennkondensatoren einen Einfluss auf die Penetration hat, wurden diese Messungen alle 6 Monate wiederholt. Die Messungenauigkeit ergibt sich aus der Standardabweichung der einzelnen Messungen. Der Mittelwert aus allen Messungen für die beiden Messeinheiten ergibt einen Abscheidegrad des unangelagerten ^{218}Po von $(6,4\pm 1,6) \%$. Dies entspricht dem durch das Modell errechneten Wert. Es zeigte sich,

dass es zu keiner Beeinflussung des Abscheideverhaltens beider Trennkondensatoren durch die Oxidation des Aluminiums kommt, aus welchem diese gefertigt sind.

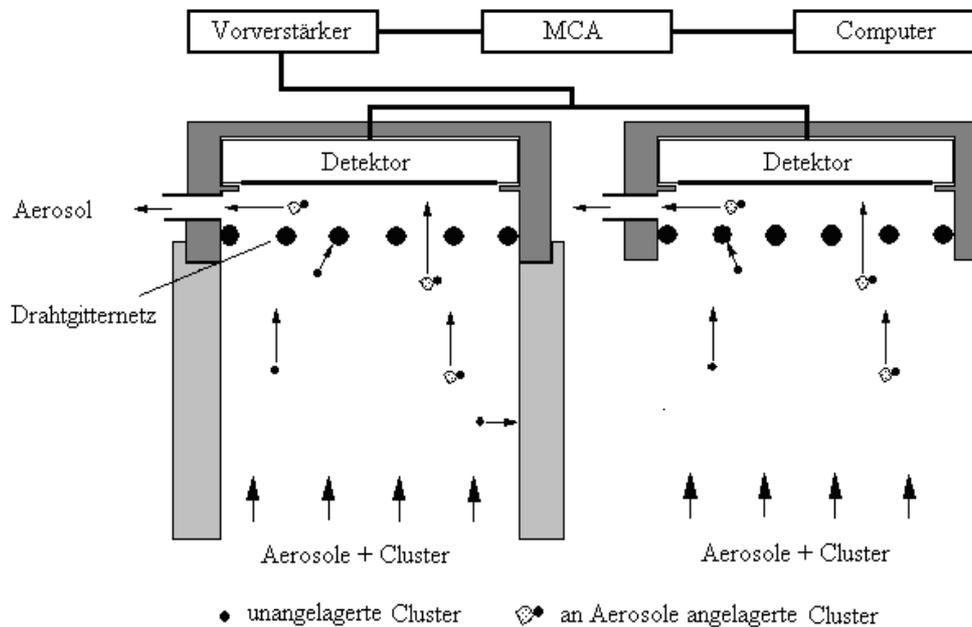


Abbildung 13: Messung der Penetration durch den Zylinder des Trennkondensators für Partikeldurchmesser kleiner als 5 nm

- Bestimmung der Leckrate der Radonkammer:

Zur Abschätzung der Ventilationsrate wurde die Leckrate des Radongases aus der Kammer hinaus bestimmt. Dazu wurde die Kammer mit einer bestimmten Menge ^{222}Rn geflutet. Danach wurde kontinuierlich über einen Zeitraum von mehreren Tagen die Radongaskonzentration in der Kammer mit Hilfe des Radongasmonitors überwacht. Es wurde pro Stunde ein Messwert aufgenommen. Aus dem anschließenden Vergleich der gemessenen mit der theoretischen Zerfallskurve wurde die Leckrate der Kammer ermittelt. Diese Messungen wurden viermal durchgeführt. Die Messungenaugigkeit entspricht dem statistischen Fehler der gemessenen Zählraten. Aus den gemessenen Leckraten ergibt sich eine Ventilationsrate welche kleiner ist als $v = 0,5 \text{ h}^{-1}$. Damit ist sie also in den Modellrechnungen vernachlässigbar klein gegenüber den Zerfallskonstanten des ^{218}Po und des ^{214}Pb .

4.5 Bestimmung der geladenen Anteile der unangelagerten Radonzerfallsprodukte

Die Messungen zum geladenen Anteil der unangelagerten Radonfolgeprodukte lassen sich in 2 Bereiche unterteilen:

- Messung des geladenen Anteils des ^{218}Po und des ^{214}Pb unter Raumluftbedingungen:

12 Stunden vor Beginn der eigentlichen Messung wurde das Radongas in die Radonkammer eingelassen, so dass sich ein Gleichgewichtszustand einstellen konnte. Danach wurde mit den Messungen begonnen. Es wurde simultan die Kammerluft durch beide OBST-Messeinheiten mit einem Durchsatz von je $11 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ gesaugt. An eine der beiden Einheiten war eine Spannung von 1 kV angelegt, so dass dort die geladenen unangelagerten Radonfolgeprodukte an der Elektrode des Trennkondensators abgeschieden wurden. An die andere Einheit wurde keine Spannung angelegt. An den beiden OBST-Messköpfen wurde so an dem einen Messkopf nur der neutrale unangelagerte Anteil der Folgeprodukte registriert, während an dem anderen Messkopf der komplette unangelagerte Anteil (jeweils abzüglich der Anlagerungsverluste an den Innenwänden des Trennkondensators) gemessen wurde (siehe Abb. 14). Aus dem direkten Vergleich beider Messungen ergibt sich die gesuchte Größe des geladenen unangelagerten Radonfolgeprodukts. Pro Messung wurden die unangelagerten Radonfolgeprodukte 20 Minuten gesammelt. Nach einer Wartezeit von einer Minute wurde vier Mal für je acht Minuten ein Abklingspektrum aufgenommen. Aus diesen Abklingspektren wurde die Konzentrationen des unangelagerten ^{218}Po ermittelt. Die Messungsgenauigkeit ergibt sich aus den statistischen Fehlern der Zählraten und lag im Mittel bei $(12\pm 6)\%$. Zusätzlich wurden während der gesamten Messung Temperatur, relative Feuchte, Radongaskonzentration und die Konzentration der einzelnen Folgeprodukte aufgenommen bzw. überwacht. Da das ^{214}Pb aufgrund der Abreicherung durch die Ablagerungsprozesse nur in wesentlich geringeren Konzentrationen als das ^{218}Po vorkommt, ergaben sich damit auch größere Messungsgenauigkeiten. Sie lagen im Mittel im Bereich von $(36\pm 10)\%$. Zur Minimierung dieses Fehlers wurden Sammel- und Abklingsmessung miteinander kombiniert. Die Sammelzeit wurde erhöht und betrug 24 min gefolgt von einer Warteperiode von 1 min und einer 24 min Abklingsmessung. Aus den beiden

Messungen wurden der geladene Anteil und die Konzentration des unangelagerten Anteils des ^{214}Pb errechnet (siehe Kapitel 4.6.4). Aus den Zählraten ergab sich für das ^{214}Pb im Mittel ein Fehler von $(23\pm 9)\%$. Unter diesen Bedingungen war eine sinnvolle Bestimmung des geladenen unangelagerten Anteils des ^{214}Pb nur bei einer Feuchte von 15 % unter der Variation der Radongaskonzentration möglich. Da hier aufgrund der theoretischen Überlegungen der größte geladene Anteil zu erwarten war. Zur Quantifizierung der bis dahin erzielten Messergebnisse wurden die geladenen Anteile der unangelagerten Radonfolgeprodukte zusätzlich noch bei einer Radongaskonzentrationen im Bereich von $1100\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und drei verschiedenen Feuchten mit der in Abbildung 15 dargestellten Anordnung bestimmt.

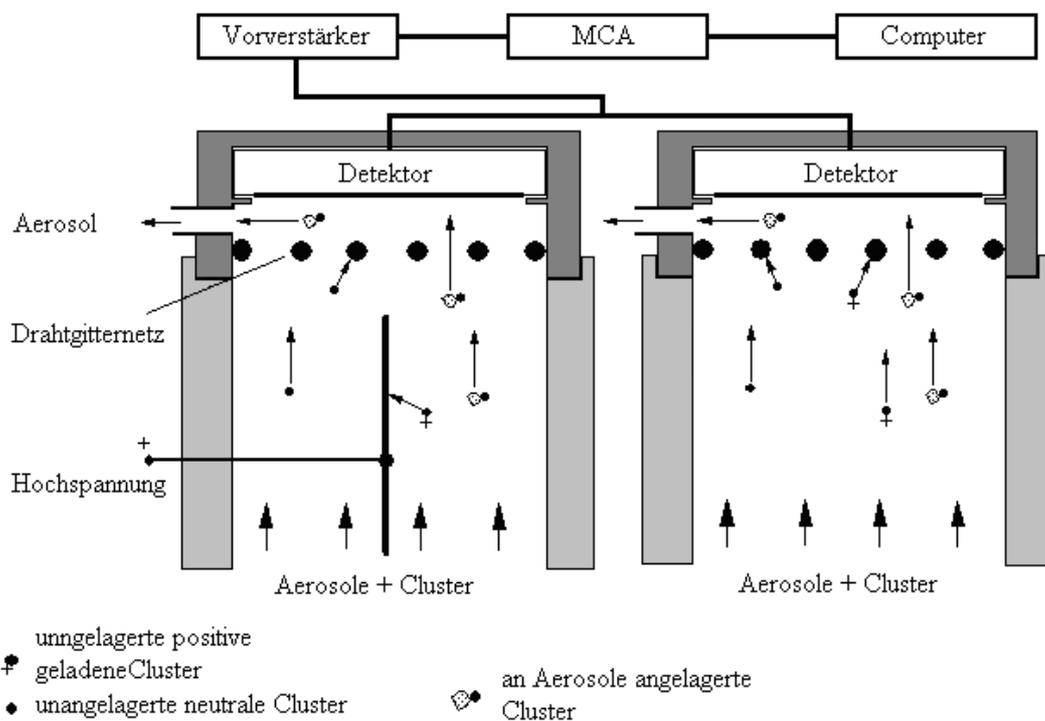


Abbildung 14: Aufbau zur Messung des geladenen Anteils der unangelagerten Radonfolgeprodukte

- Die Messung des geladenen Anteils des ^{218}Po nach der primären Einfangreaktion:

Zur Messung des geladenen Anteils des ^{218}Po unmittelbar nach dem Zerfall, d.h. bevor Neutralisationsprozesse einsetzen, war es erforderlich den experimentellen Aufbau zu modifizieren. Die Raumluft wurde durch die Radongasquelle (Mod. Pylon) in ein kleines Puffervolumen und dann durch die Gasdicht an dem Puffervolumen angebrachten OBST-Messeinheiten gesaugt (siehe Abb. 15). Zur Minimierung des Einflusses der relativen Luftfeuchte auf die Emanation der Radongasquelle und auf die

Neutralisation des entstandenen ^{218}Po wurde die Luft durch Trockenstrecken, welche mit CaCl_2 gefüllt waren, geleitet. Es wurde so eine konstante relative Feuchte von 8 % bei 20°C eingestellt. Das Puffervolumen selbst besteht aus einem Edelstahlzylinder mit einem Volumen von 10,3 l. Der Luftdurchsatz durch das gesamte System betrug $18\text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (durch jede Messeinheit wurden $9\text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ gesaugt). Da die Radongasquelle auf einen maximalen Luftdurchsatz von $10\text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ beschränkt ist, musste über einen Bypass zum Ausgleich weitere Raumluft in das Puffervolumen geführt werden. Die Eingänge der Trennkondensatoren wurden mit Cellulosefiltern verschlossen, so dass keine bereits im Puffervolumen gebildeten Folgeprodukte in die Messeinheit gelangen konnten.

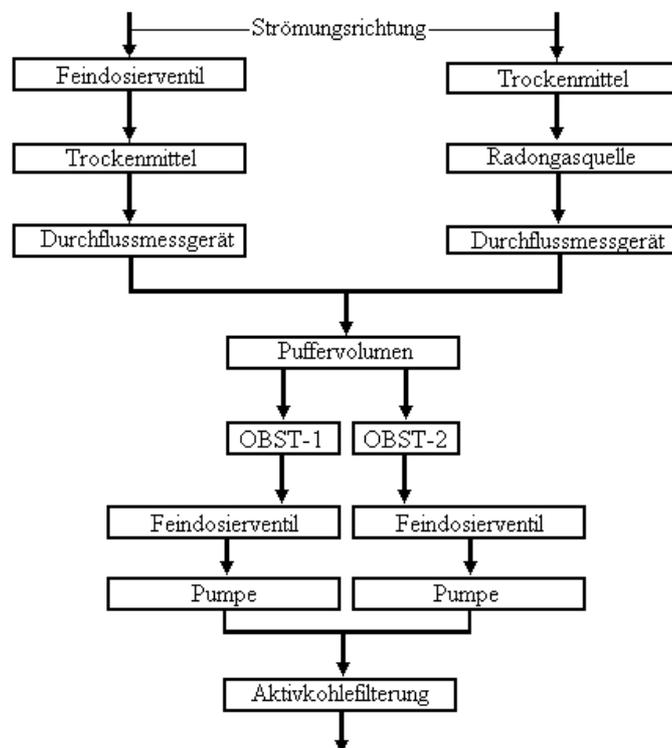


Abbildung 15: Schematische Darstellung der Messung des geladenen Anteils des ^{218}Po unmittelbar nach dem Zerfall des ^{222}Rn

Die am Abscheidetrennkondensator angelegte Spannung wurde auf 5 kV erhöht. Die Strecke in Längsrichtung, die ein einfach geladenes Teilchen in dem zylindersymmetrischen elektrischen Feld des Trennkondensators zurücklegen muss um vom äußeren Rand des Trennkondensators zur Zentralelektrode zu gelangen wird gemäß Roth [1989] wie folgt berechnet:

$$L = \frac{Q \cdot \ln(r_a/r_i)}{2 \cdot \pi \cdot V \cdot Z} \quad (63)$$

- Z: elektrische Mobilität
 Q: Gasvolumenstrom durch den Trennkondensator
 V: angelegte Spannung
 r_a: Außenradius des Kondensators
 r_i: Radius der Innenelektrode des Kondensators

Damit kann die mittlere Zeit bis zur Abscheidung des geladenen unangelagerten ²¹⁸Po auf dem Kondensatordraht auf 3·10⁻³ s abgeschätzt werden. Bei einer Konzentration von 1000 Bq·m⁻³ und einer Neutralisationsrate die sich gemäß (23) zu 2·10⁻² s⁻¹ berechnet, werden alle im Kondensatorvolumen geformten geladenen, unangelagerten ²¹⁸Po-Ionen auf dem Draht vor der Neutralisation abgeschieden. Jede Messung dauerte 1 h. Es wurden 15 Messungen durchgeführt. Der Fehler ergibt sich aus der Standardabweichung der Einzelmessungen.

4.6 Übersicht über die Messungen in der Radonkammer

Um unter Raumluftbedingungen variable Konzentrationen von Radongas in der Luft einstellen zu können und den strahlenschutztechnischen Bestimmungen zu genügen, wurde eine Kammer von etwa 8 m³ Rauminhalt aufgebaut. Die äußeren Wände dieser Kammer bestehen aus Holz. Das Innere der Kammer ist mit Edelstahlplatten ausgekleidet. Zwischen der äußeren Holz- und der inneren Edelstahlwand wurde eine spezielle Folie zur Abdichtung eingezogen. Das Radongas wird von einer Gasquelle der Firma Pylon (Mod. 1025) über ein Puffervolumen im Kreislauf durch die Kammer gepumpt, so dass Konzentrationen von 50 Bq·m⁻³ bis 100000 Bq·m⁻³ eingestellt werden können. Damit Berechnungen des geladenen Anteils unter den Kammerbedingungen möglich waren mussten folgende Messungen durchgeführt werden (siehe auch Abbildung 16):

1. Messung der Radongaskonzentration

2. Simultane Messung des gesamten und neutralen unangeleragerten Anteils der Radonfolgeprodukte
3. Messung der Konzentration der Folgeprodukte (angeleragert und unangeleragert, „Filter-Methode“)
4. Bestimmung der Ionendosisleistung
5. Messung Aerosolkonzentration
6. Messung der Temperatur und der Luftfeuchte

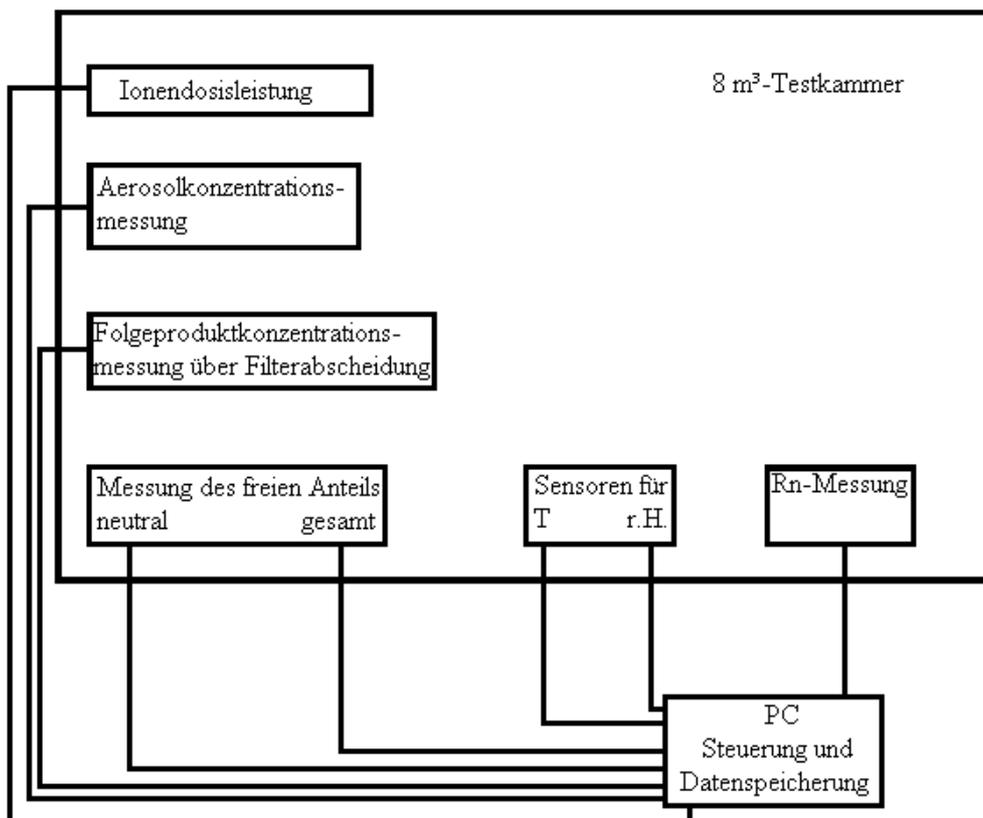


Abbildung 16: Schematische Darstellung der Messungen in der Radonkammer

Nach der Einleitung des Radongases in die Kammer und nachdem sich ein Gleichgewichtszustand eingestellt hatte, wurde die Ionendosisleistung in der Kammer bestimmt und die Messungen gestartet. Die Steuerung, Datenspeicherung und Datenweiterverarbeitung erfolgte über einen PC. Zur Einstellung von Luftfeuchten im Bereich von 30 % bis 95 % (bei 20° C) wurde ein Luftbefeuchter vor Beginn der Messungen eingeschaltet. Um relative Feuchten der Luft im Bereich von 12 % bis 30 % (bei 20° C) in der Kammer einzustellen, wurde die Luft in der Kammer durch vier Trocknungsrohre, welche mit Calcium Chlorid (CaCl₂) gefüllt waren, geleitet.

4.6.1 Verwendete Detektoren

Zur Messung des Alpha-Zerfalls des ^{218}Po und des ^{214}Po wurden so genannte PIPS-Cam Halbleiterdetektoren der Firma Canberra verwendet. Dabei steht die Abkürzung PIPS für Passivated Implanted Planar Silicon. Der Zusatz Cam bezeichnet gegen Lichteinfall unempfindliche Detektoren. Diese Lichtunempfindlichkeit wird durch eine besondere Lackschicht auf der Detektoroberfläche erreicht. Alle Detektoren haben eine kreisrunde Detektionsfläche von 300 mm^2 Flächeninhalt. Diese wird durch eine pn-Grenzfläche einer in Sperrrichtung geschalteten Diode gebildet. Treffen Alphapartikel auf diese Grenzfläche werden Elektronen-Loch-Paare erzeugt, die als Stromimpulse elektronisch erfasst werden. Die Pulsstärke ist proportional zur kinetischen Energie des Alphapartikels. Das Detektorsignal wird über eine Vor/Hauptverstärkereinheit der Firma Canberra an einen Vierkanalanalysator der Firma Ortec, vom Typ Spectrummaster 912, weitergeleitet. Die Detektoren werden mit einer Spannung von $+40\text{ V}$ betrieben (siehe Abb. 17).

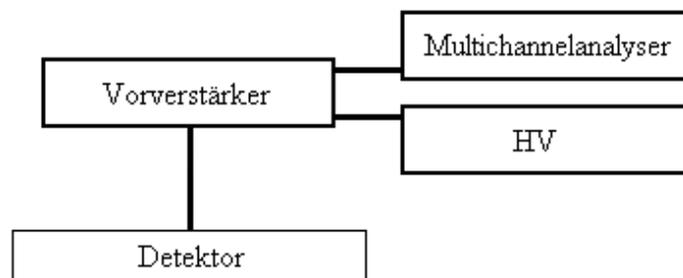


Abbildung 18: Schematische Darstellung der Messelektronik zur Messung des Alphazerfalls

Über den Spectrummaster, der unterschiedlich hohen Spannungsimpulsen unterschiedliche Kanäle zuordnet, können gleichzeitig bis zu 8 Detektoren betrieben und ausgelesen werden. Bevor die Detektoren in die einzelnen Messsysteme eingebaut wurden, erfolgte eine Bestimmung des Detektorwirkungsgrades mit einem ebenen ^{241}Am -Standard der Firma Amersham. Dabei wurde der Standard mit einer kreisrunden aktiven Fläche von 300 mm^2 im Abstand von 3 mm über der Detektionsfläche positioniert. Pro Detektor erfolgten je 10 Messungen mit einer Messdauer von je 5 Minuten. Die Mittelwerte dieser Messungen finden sich in nachstehender Tabelle 7.

Tabelle 7: Wirkungsgrad und Verwendungsort der eingesetzten Detektoren

Seriennummer	Wirkungsgrad [%]	Standardabweichung	Verwendung
43207	19,93	0,07	OBST-1
43209	20,16	0,08	OBST-2
43208	21,31	0,1	RBS
18023	24,11	0,24	Gasmonitor
6401	20,59	0,09	Filtermethode

4.6.2 Messung des Radongases

Die Messung der Radongaskonzentration in der Raumluft erfolgt nach dem Prinzip der elektrischen Abscheidung des geladenen ^{218}Po auf einem Halbleiterdetektor [Jakobi, 1963; Malolepsy, 1994]. Die Raumluft wird dabei durch eine Trockenstrecke geführt, um den Einfluss der Luftfeuchte auf die Messung auszuschließen. Als Trockenmittel dient (Calciumchlorid CaCl_2). Danach wird die Luft durch einen Filter gesaugt. Hier werden die bereits gebildeten Radonfolgeprodukte und Aerosole abgeschieden. Die so gereinigte Messluft gelangt anschließend in die eigentliche Messkammer. Diese besteht aus einer Aluminium Kugel mit einem Volumen von 1,5 Liter. Zwischen der Aluminiumwand und dem Halbleiterdetektor liegt eine Hochspannung von 10 kV an. Dabei befindet sich die Kammerwand auf positivem Potential. Das anliegende elektrische Feld führt die in der Messkammer durch den Radon Zerfall gebildete ^{218}Po Ionen auf den Halbleiterdetektor, wo diese mit $T_{1/2} = 3,05$ min zerfallen. Der Detektor registriert den Radonzerfall von ^{218}Po , ^{214}Po und ^{210}Pb . Da letzteres eine Halbwertszeit von $T_{1/2} = 26$ a besitzt, führt es zu einer langfristigen Kontamination des Detektors. Als Radongasmonitor wird die komplette Zusammenstellung aus Trocknung, Hochspannungsversorgung, Filter und Messkammer bezeichnet entsprechend der schematischen Darstellung in Abbildung 18. Zur Kalibrierung des Radongasmonitors wurde eine Radonquelle (Firma Pylon, Modell 1025) verwendet. Unter Variation des Luftdurchsatzes wurde Messluft mit bekannter Radongaskonzentration erzeugt. Diese Messluft wurde durch den Monitor geleitet. Dabei wurde mehrfach die Zählrate im Energiebereich des ^{218}Po bestimmt. Aus diesen Zählraten ergab sich der Mittelwert der Nachweiswahrscheinlichkeit so wie dessen Standardabweichung:

$$\eta_{\text{gas}} = (7,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-4} \text{ Cps}/(\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3})$$

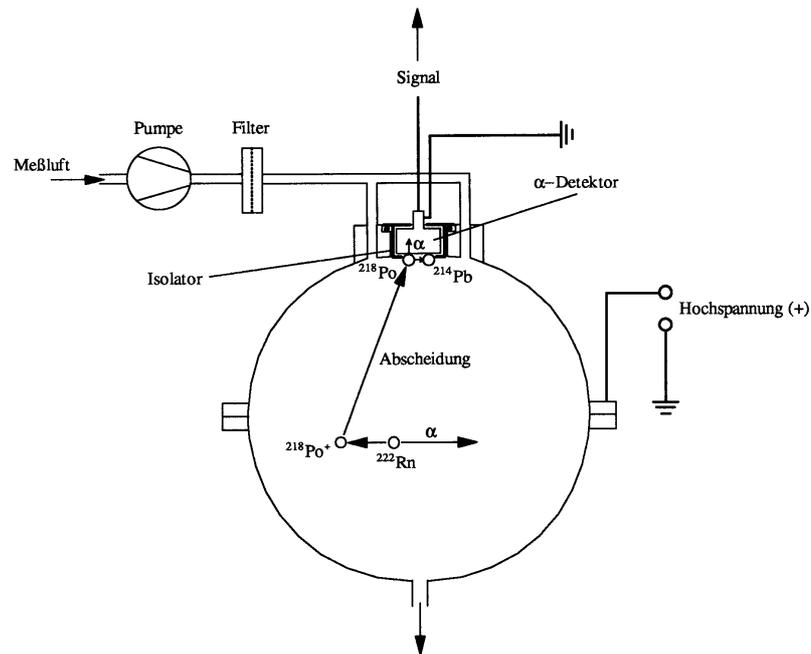


Abbildung 18: Elektrostatische Abscheidung zur Messung der Radongaskonzentration

4.6.3 Messung der Folgeprodukte

Zur Messung sowohl der Radonfolgeprodukte ohne Eingangsverluste wurde die Open-Face-Filtermethode angewendet. Hierbei wird die Raumluft für eine bestimmte Sammelzeit durch den Filter gesaugt. Nach einer Wartphase, in welcher der Filter im Abstand von 3 mm zur Detektionsoberfläche des Alphadetektors positioniert wird, wird eine Abklingkurve aufgenommen (siehe Abb. 19). Aus dieser Abklingkurve wird anschließend die gesamte Folgeproduktkonzentration mit Hilfe eines Computerprogramms berechnet. Die Konzentrationen der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Po geben zusammen mit der Radongaskonzentration Auskunft über die Ionendosisleistung. Das Verhältnis von der ^{218}Po -Konzentration zur Radongaskonzentration ergibt zusammen mit der Zerfallskonstanten des ^{218}Po den Anlagerungsparameter S_1 in den Modellierungen.

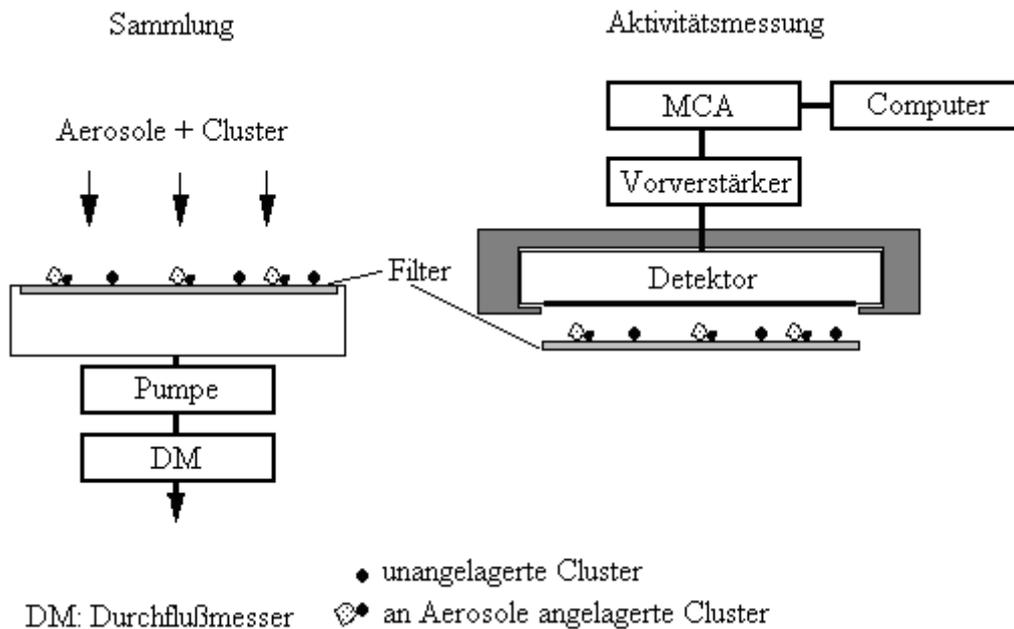


Abbildung 19: Aufbau zur Messung der Folgeproduktkonzentration mit der Filtermethode

Analog wird zur Bestimmung des freien Anteils der Radonfolgeprodukte verfahren. Anstelle des Filters wird hier jedoch ein Drahtgitternetz verwendet.

4.6.4 Berechnung der Folgeproduktkonzentration

Zur Berechnung der Konzentration der Radonfolgeprodukte, welche aus einem Filter oder Drahtgitternetz gesammelt wurden, wählt man folgende Vorgehensweise. Für die Anzahl N_j der Atome des entsprechenden Radonfolgeprodukts, welches in der Zeit t mit der Durchflussrate v auf der entsprechenden Vorrichtung angesammelt wurde, gilt:

$$\frac{dN_1}{dt} = v \cdot c_1 - \lambda_1 \cdot N_1 \quad (64)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = v \cdot c_2 - \lambda_2 \cdot N_2 + \lambda_1 \cdot N_1 \quad (65)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = v \cdot c_3 - \lambda_3 \cdot N_3 + \lambda_2 \cdot N_2 \quad (66)$$

N_j : Anzahl der Atome;

v : Durchflussrate

c_j : Teilchenkonzentration

λ_j : Zerfallskonstante

Aufgrund des Verhältnisses der Zerfallskonstanten entspricht die Teilchenkonzentration des ^{214}Bi der des ^{214}Po . Unter der Voraussetzung, dass die Konzentration der zu sammelnde Radionuklide in der Luft konstant ist oder durch einen Mittelwert beschrieben werden kann und dass ein konstanter Volumenstrom während der Sammelphase vorliegt, ergibt sich die Lösung der drei Differentialgleichungen unter der Annahme, dass zum Zeitpunkt $t = 0$, $N(0) = 0$ wie folgt:

$$N_1(t) = \frac{v \cdot c_1}{\lambda_1} + \left(N_{10} - \frac{v \cdot c_1}{\lambda_1} \right) \cdot e^{-\lambda_1 t} \quad (67)$$

$$N_2(t) = \frac{v \cdot c_2}{\lambda_2} + \frac{v \cdot c_1}{\lambda_2} + \frac{\lambda_1 \cdot \left(N_{10} - \frac{v \cdot c_1}{\lambda_1} \right)}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot e^{-\lambda_1 t} + \left[N_{20} - \frac{v \cdot (c_2 + c_1)}{\lambda_2} - \frac{\lambda_1 \cdot \left(N_{10} - \frac{v \cdot c_1}{\lambda_1} \right)}{\lambda_2 - \lambda_1} \right] \cdot e^{-\lambda_2 t} \quad (68)$$

$$N_{3/4}(t) = \frac{v \cdot (c_3 + c_2 + c_1)}{\lambda_3} + \frac{\lambda_2 \cdot \lambda_1 \cdot \left(N_{10} - \frac{v \cdot c_1}{\lambda_1} \right)}{(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot (\lambda_3 - \lambda_1)} e^{-\lambda_1 t} + \left[N_{20} - \frac{v \cdot (c_2 + c_1)}{\lambda_2} - \frac{\lambda_1 \cdot \left(N_{10} - \frac{v \cdot c_1}{\lambda_1} \right)}{\lambda_2 - \lambda_1} \right] \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \cdot e^{-\lambda_2 t} + \left[N_{30} - \frac{v \cdot (c_3 + c_2 + c_1)}{\lambda_3} - \frac{\lambda_2 \cdot \lambda_1 \cdot \left(N_{10} - \frac{v \cdot c_1}{\lambda_1} \right)}{(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot (\lambda_3 - \lambda_1)} - \left[N_{20} - \frac{v \cdot (c_2 + c_1)}{\lambda_2} - \frac{\lambda_1 \cdot \left(N_{10} - \frac{v \cdot c_1}{\lambda_1} \right)}{\lambda_2 - \lambda_1} \right] \cdot \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \right] e^{-\lambda_3 t} \quad (69)$$

Bei Verwendung eines unbeladenen Filters oder Screens gilt:

$$N_{10} = N_{20} = N_{30} = 0$$

Wird Luft für einen Zeitraum t_s auf dem Filter/Drahtgitternetz gesammelt, so lässt sich die Anzahl der Atome am Ende der Sammelphase durch die drei Gleichungen $N_1(t_s)$, $N_2(t_s)$ und $N_3(t_s)$ beschreiben. Um die Anzahl der Radionuklide (wie oben) auf der Sammelanordnung nach Beendigung der Sammelphase zu beschreiben, definiert man eine Zeit $t_p = 0$. Der Zeitraum nach $t_p = 0$ wird Abklingphase genannt. Die Differentialgleichungen für die Abklingphase unterscheiden sich von denen der Sammelphase nur dadurch, dass die Durchflussrate $v = 0$ ist. Für die Randbedingung $t_p = 0$, $N_j = N_j(t_s)$ ist erhält man:

$$N_1 = N_1(t_s) \cdot e^{-\lambda_1 t_p} \quad (70)$$

$$N_2 = N_2(t_s) \cdot e^{-\lambda_2 t_p} + \frac{N_1(t_s) \cdot \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot (e^{-\lambda_1 t_p} - e^{-\lambda_2 t_p}) \quad (71)$$

$$N_3 = N_3(t_s) \cdot e^{-\lambda_3 t_p} + \frac{N_1(t_s) \cdot \lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot (\lambda_3 - \lambda_1)} \cdot (e^{-\lambda_1 t_p} - e^{-\lambda_2 t_p}) - \left[\frac{N_1(t_s) \cdot \lambda_1 \lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot (\lambda_3 - \lambda_1)} - \frac{N_2(t_s) \cdot \lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} \right] \cdot (e^{-\lambda_2 t_p} - e^{-\lambda_3 t_p}) \quad (72)$$

Mit Hilfe dieses Gleichungssystems aus drei Gleichungen mit drei Unbekannten lässt sich aus den beobachteten Zählraten für ^{218}Po und ^{214}Po die Folgeproduktkonzentration für ^{214}Po , ^{214}Pb und $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Po}$ aus der Sammelphase oder der Abklingphase berechnen. Als Voraussetzung dabei gilt, dass die Messeffizienz für alle Nuklide gleich ist, die ^{214}Pb Konzentration aus der ^{214}Po Konzentration berechenbar ist und dass die Anzahl der Atome N_j zum Zeitpunkt $t = 0$ bekannt ist.

4.6.5 Bestimmung der Ionendosisleistung

Da die Ionendosisleistung einen erheblichen Einfluss auf die Neutralisationsrate der geladenen unangelernten Radonfolgeprodukte hat, ist eine Erfassung der einzelnen Beiträge zur Ionisation erforderlich. Hierzu wird die Hintergrundionisationendosisleistung durch kosmische Strahlung und Gamma-Strahlung von sich in der Nähe zur Radonkammer befindlicher Strahlungsquellen mit einem handelsüblichen Ionendosisleistungsmessgerät erfasst. Die weiteren Beiträge zur Gesamtionisationsrate ergeben sich durch den Alphaerfall

von ^{222}Rn und seinen Folgeprodukten ^{218}Po und ^{214}Po . Die Beiträge durch Beta- und Photonenstrahlung zur Ionendosisleistung sind in erster Näherung im Vergleich zu den Beiträgen der Alphastrahlung vernachlässigbar klein (es ergibt sich bei deren Berücksichtigung ein Korrekturfaktor bei der Bestimmung der Ionendosisleistung von 2,3). Da zur Bildung eines Ionenpaares 33 eV nötig sind bedeutet dies, dass beim Alphazerfall von Radon mit der Zerfallsenergie von 5,5 MeV, $1,67 \cdot 10^5$ Ionenpaare pro Alpha-Teilchen gebildet werden. Analog werden beim Alpha Zerfall von ^{218}Po (Zerfallsenergie 6,0 MeV) und ^{214}Po (Zerfallsenergie 7,7 MeV) $1,82 \cdot 10^5$ bzw., $2,33 \cdot 10^5$ Ionenpaare pro Alpha-Teilchen geformt (siehe Tabelle 8).

Tabelle 8: Ionenpaare pro Alpha-Teilchen beim Alpha-Zerfall von ^{222}Rn , ^{218}Po und ^{214}Po

Nuklid	Alpha-Zerfallsenergie [MeV]	Ionenpaare pro Alpha-Teilchen
^{222}Rn	5,5	$1,67 \cdot 10^5$
^{218}Po	6,0	$1,82 \cdot 10^5$
^{214}Po	7,7	$2,33 \cdot 10^5$

Ein Röntgen entspricht wiederum $2,077 \cdot 10^5$ Ionenpaaren pro m^3 . Damit ergibt sich für eine Radongaskonzentration von $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, eine Ionendosisleistung von $0,29 \mu\text{R} \cdot \text{h}^{-1}$, für eine Aktivitätskonzentration von ^{218}Po von $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, eine Ionendosisleistung von $0,32 \mu\text{R} \cdot \text{h}^{-1}$ und für $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ ^{214}Po , eine Ionendosisleistung von $0,4 \mu\text{R} \cdot \text{h}^{-1}$. Zur Umrechnung auf die SI-Einheit für die Ionendosisleistung gilt: $1 \text{ R} \cdot \text{h}^{-1} = 2,54 \cdot 10^{-4} \text{ C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h}^{-1})$. Damit ergeben sich für die Ionendosisleistung die in Tabelle 9 aufgeführten Werte in $\text{C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h}^{-1})$.

Tabelle 9: Umrechnungsfaktoren Aktivitätskonzentration nach Ionendosisleistung für ^{222}Rn , ^{218}Po und ^{214}Po

Nuklid (Aktivitätskonzentration $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)	Ionendosisleistung [$10^{-2} \text{ C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h}^{-1})$]
^{222}Rn	0,11
^{218}Po	0,13
^{214}Po	0,16

Die gesamte Ionendosisleistung errechnet sich aus der Summe der vier Einzelbeiträge wie folgt:

$$I_g = I_\gamma + I_{222\text{Rn}} + I_{218\text{Po}} + I_{214\text{Po}} \quad (73)$$

I_g : gesamt Ionendosisleistung

I_γ : Hintergrund Ionendosisleistung

$I_{222\text{Rn}}$: Ionendosisleistung aufgrund des Alpha-Zerfalls des ^{222}Rn

$I_{218\text{Po}}$: Ionendosisleistung aufgrund des Alpha-Zerfalls des ^{218}Po

$I_{214\text{Po}}$: Ionendosisleistung aufgrund des Alpha-Zerfalls des ^{214}Po

4.6.6 Bestimmung der übrigen Parameter (Luftfeuchte und Aerosolkonzentration)

Die Überwachung der relativen Feuchte und der Temperatur erfolgte mit einem elektronischen Thermo-Hygrographen des Typs OPUS der Firma Adolf Thies GmbH & Co. KG. Der verwendete externe Kombinationssensor arbeitet in einem Temperaturbereich von -30°C bis $+70^\circ\text{C}$, einer Auflösung von $0,1^\circ\text{C}$ bei einer Genauigkeit von $\pm 0,2^\circ\text{C}$ und einem Feuchtebereich von 0 % r.H. bis 100 % r.H., einer Auflösung von 0,5 % mit einer Genauigkeit von $\pm 2\%$. Die Steuerung und Datenerfassung erfolgte über den PC.

Die Aerosolkonzentration wurde mit einem Kondensationskernzähler (Condensation-Nuclei-Counter, CNC-2) der Firma General Electrics erfasst. Die Messung erfolgt über Lichtstreuung an den durch Aufkondensieren von Wasserdampf in einer Nebelkammer stark vergrößerten Aerosolen. Laut Hersteller wächst ein Partikel mit einem Radius von 10^{-6} cm zu einem Tropfen von $5 \cdot 10^{-4}\text{ cm}$ innerhalb von 100 Millisekunden an. Mit diesem Gerät lassen sich Partikel von 0,001 bis $0,1\mu\text{m}$ Durchmesser und Konzentrationen von 100 Partikeln pro cm^3 bis 10^6 Partikel pro cm^3 bei einer Genauigkeit von $\pm 20\%$ erfassen.

Der Durchsatz der Probenluft durch Radonmonitor, Folgeproduktmessung und die beiden OBST-Einheiten wurde mittels Schwebekörper-Durchflussmessern der Firma ROTA überwacht und mit Feindosierventilen geregelt. Die Durchflussmessgeräte wurden mit Hilfe eines geeichten Gasmessers, einer sogenannten Wasseruhr, alle 6 Monate überprüft. Je nach verwendetem Typ des Durchflussmessers liegt die Genauigkeit der Anzeige zwischen 8 % und 15 %.

4.7 Beweglichkeitsspektrometer

Um die Beweglichkeitsverteilung des unangelagerten ^{218}Po zu messen, gibt es verschieden Möglichkeiten. Einerseits kann man die mechanische Mobilität ausnutzen. D.h. man schaltet Drahtgitternetze mit unterschiedlichem Massenkoeffizient α und unterschiedlichen Drahtstärken zu Diffusionsbatterien zusammen und betreibt diese bei gleichem Durchsatz. In Abhängigkeit seiner Diffusionskoeffizienten werden dann die unterschiedlichen Fraktionen des unangelagerten ^{218}Po auf den verschiedenen Gittern abgeschieden. Die Nachteile dieser Methode bestehen in der geringen Sammeleffizienz und dem schlechten Auflösungsvermögen des Systems und den damit verbundenen Fehlern ($\sigma > 1,2$) bei der Bestimmung der Größenordnung des abgeschiedenen Folgeprodukts [Reineking et al. 1993]. Andererseits ist es natürlich ebenso möglich die elektrische Beweglichkeit des ^{218}Po zu nutzen. Aus der Aerosolphysik sind verschiedene Typen von elektrischen Mobilitätsspektrometern bekannt. Man unterscheidet sie nach Geometrie und Durchflusscharakteristik. Die am weitesten verbreiteten dieser Spektrometer sind Zylinderkondensatoren mit axialem Durchfluss [Hewitt 1957; Knutson et al. 1975], Plattenkondensatoren mit longitudinalem Durchfluss [Yeh et al. 1976] und radiale Plattenkondensatoren mit radialem Durchfluss [Prouprix et al. 1990]. In all diesen Geräten erfolgt die Klassifizierung über die Abscheidung der Partikel in Abhängigkeit ihrer elektrischen Mobilität von der an den Kondensatoren angelegten Spannung. Ein Effektivitätsvergleich der unterschiedlichen elektrischen Mobilitätsspektrometer für Partikel in Nanometerbereich zeigt, dass ein Radialbeweglichkeitsspektrometer in diesem Bereich das beste Auflösungsvermögen besitzt [Winkelmayer et al. 1991]. Daher wurde beschlossen, ein solches für die Mobilitätsmessung des geladenen unangelagerten ^{218}Po zu bauen.

4.7.1 Aufbau des radialen Beweglichkeitsspektrometers (RBS)

Die wichtigsten Forderungen an das RBS waren:

- Die Strömungsverhältnisse im Inneren des Spektrometers mussten laminar sein.

Nur dann erfolgt die Abscheidung der geladenen unangelagerten ^{218}Po -Cluster im elektrischen Feld des radialen Plattenkondensators aufgrund ihrer elektrischen Mobilität. Abschätzungen der Reynoldszahl zeigen, dass bei Durchflussraten von maximal $14 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ von einer laminaren Strömung ausgegangen werden kann. Da die OBST zur Registrierung des unangelagerten Anteils des ^{218}Po verwendet werden sollte, wurde zunächst von einer Durchflussrate von $11 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ ausgegangen.

- Die Aufenthaltsdauer der unangelagerten ^{218}Po -Cluster im RBS sollte minimal sein.

Ein Faktor, der das Auflösungsvermögen des Spektrometers limitiert besteht in der so genannten Diffusionsverbreiterung, aufgrund der Eigenbeweglichkeit der Cluster. Einstein formulierte den Zusammenhang zwischen der Diffusionsverbreiterung und dem Diffusionskoeffizienten und der Zeit wie folgt:

$$x^2 = 2 \cdot D \cdot t \quad (74)$$

x^2 : Mittleres Verschiebungsquadrat

t : Aufenthaltsdauer im RBS

Das von den Platten des Kondensators eingeschlossene Volumen hat eine Größe von 603 cm^3 . Bei einer Durchflussrate von $11 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ beträgt die mittlere Aufenthaltsdauer in diesem Volumen $3,6 \text{ s}$. Ein Partikel mit einem Durchmesser von $d_p = 0,75 \text{ nm}$ erfährt somit eine mittlere Diffusionsverbreiterung von $\bar{x} = 0,87 \text{ cm}$. Nach $3,6 \text{ s}$ kann das Teilchen sich bis $0,87 \text{ cm}$ von seiner eigentlichen Bahnkurve entfernt aufhalten. Ein Teilchen mit einem Durchmesser $d_p = 1 \text{ nm}$ erfährt innerhalb derselben Zeit eine Diffusionsverbreiterung von $\bar{x} = 0,75 \text{ cm}$. Erhöht man die Durchflussrate auf $13 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, so verringert sich die mittlere Aufenthaltsdauer auf $2,6 \text{ s}$ und damit die mittlere Diffusionsverbreiterung für ein $0,75 \text{ nm}$ Teilchen auf $\bar{x} = 0,75 \text{ cm}$ und für ein 1 nm Teilchen auf $\bar{x} = 0,53 \text{ cm}$. Eine weitere Verringerung der Aufenthaltsdauer und damit der Diffusionsverbreiterung ist nur durch eine weitere Erhöhung des Durchflusses zu erreichen. Dann jedoch würde keine laminare Strömung mehr im RBS herrschen.

- Es sollten alle geladenen unangelernten Cluster im elektrischen Feld des RBS abgeschieden werden.

Für den Abscheideort R_2 der Cluster auf der Bodenplatte eines radialen Beweglichkeitsspektrometers so wie es auch hier verwendet wird gilt [Pourprix et al. 1990] (siehe Abb. 20):

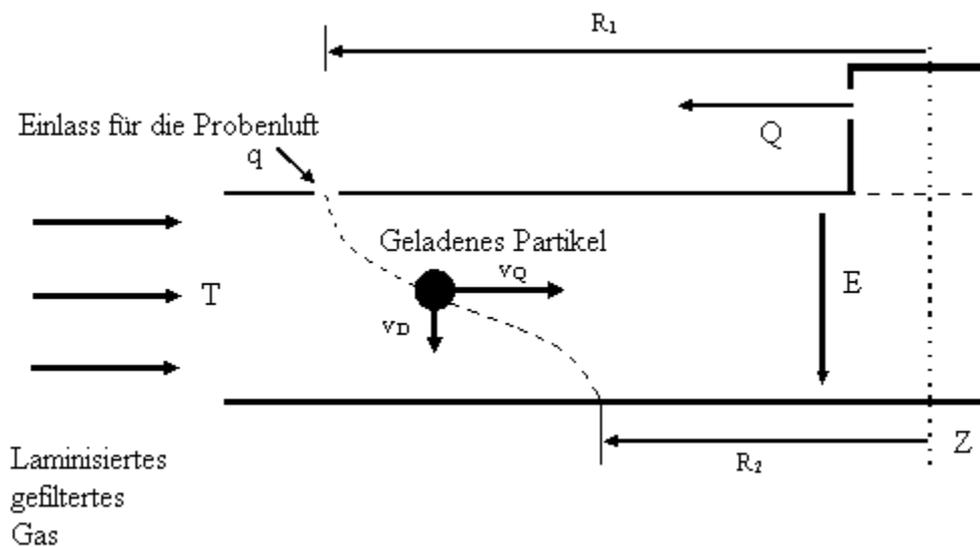


Abbildung 20: Abscheideort eines geladenen Partikels auf der Bodenplatte des radialen Beweglichkeitsspektrometers

$$R_2 = \left(R_1^2 - \frac{Q}{\pi \cdot Z \cdot E} \cdot \frac{1}{n} \right)^{0,5} \quad (75)$$

R_1 : Radius des Plattenkondensators

R_2 : Abscheideort eines geladenen Teilchens auf der Kondensatorbodenplatte

Q : Gesamtvolumenstromrate

T : Trägergasvolumenstromrate

q : Probenstromvolumenrate

E : elektrisches Feld

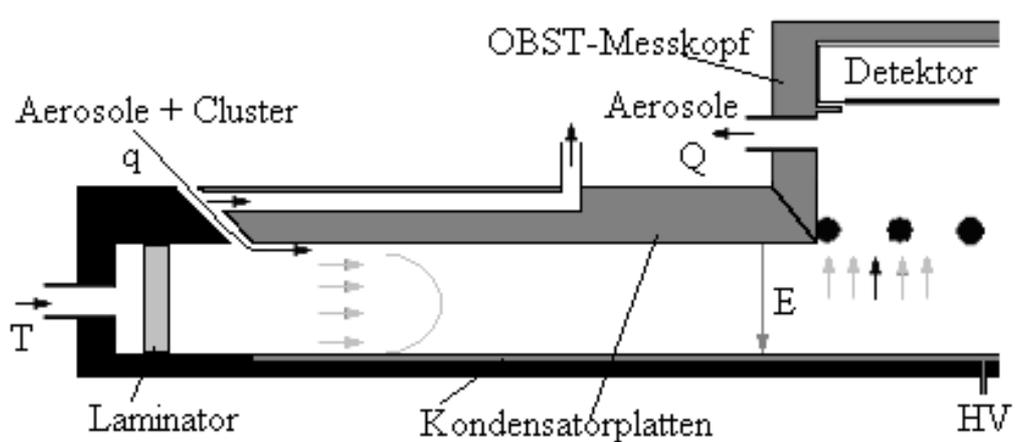
Z : elektrische Mobilität

n : Anzahl der Elementarladungen

Für Cluster der Größe 0,75 nm, 1 nm und 3 nm wurde die elektrische Mobilität gemäß (10a-b) für 1 Elementarladung berechnet. Damit ergeben sich elektrische Mobilitäten von $0,7 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ bis $2 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. Berechnet man nun mit diesen Mobilitäten diejenigen Spannungen ab welchen die geladenen unangelagerten ^{218}Po -Cluster auf der Bodenplatte des Kondensators abgeschieden werden, so stellt man fest, dass dies bei einer Spannung von 5 V der Fall ist. Der Abscheideort in Abhängigkeit von angelegter Spannung und der elektrischen Mobilität wird durch einen um den Mittelpunkt der Kondensatorplatte konzentrischen Kreis mit dem Radius R_2 gebildet. Bei einer an den Kondensator angelegten Spannung von 5 V beträgt dieser Radius für ein Teilchen mit einem Durchmesser von 3 nm 2 cm, für ein Teilchen mit einem Durchmesser von 1 nm 5 cm und für ein Teilchen mit einem Durchmesser von 0,75 nm 7,5 cm.

Das gemäß diesen Überlegungen gebaute RBS (siehe Abb. 21) besteht aus einem flachen zylinderförmigen Gehäuse mit einem Durchmesser von 33 cm und einer Höhe von 11 cm. Der Deckel besteht aus einer äußeren und einer inneren Scheibe. Die äußere Scheibe besteht aus eloxiertem Aluminium und ist über mehrere Schrauben an der Gerätewand befestigt. Die innere Aluminiumscheibe ist über drei nichtleitende Brücken mit der äußeren verbunden. Zwischen Äußerer und innerer Scheibe besteht ein Abstand von 0,01 cm. Der Rest des Gehäuses besteht aus PE-Kunststoff. Im inneren des Gehäuses ist im Abstand von 1 cm zur Gerätewand ein Filter zur Laminierung des Trägergasstroms angebracht. Der Trägergasstrom wird durch einen Anschluss in der Gehäusewand in das RBS geführt. Der Laminator hat eine Breite von 4 cm. In dem von ihm gebildeten Innenraum befindet sich der Plattenkondensator. Der Boden des Innenraumes wird im Wesentlichen durch die untere Kondensatorplatte gebildet. Sie besteht aus Aluminium und hat einen Durchmesser von 20 cm. An diese Platte wird später der negative Pol der Spannungsversorgung angeschlossen. Damit ist sie die Abscheidefläche für die geladenen unangelagerten ^{218}Po -Cluster. Ihr Gegenstück bildet der innere Teil des Deckels, in dessen Mitte der OBST-Messkopf eingelassen ist. Über den Messkopf wird das Gas aus dem RBS abgesaugt. Als Trägergasmedium dient Stickstoff. Dieser wird über Druckminderer, Feindosierventil und einem Schwebekörperdurchflussmesser mit einer Volumenrate von $10 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$ in das RBS gepresst. Saugt man nun das Gas mit einer höheren Rate aus dem RBS wieder ab, so wird über den Schlitz zwischen äußerer und innerer Platte ein Probenstrom in das Gerät eingesaugt. Die Größe des Probenstromes wird durch die Differenz zwischen der

Trägergasvolumenstromrate und der Absaugvolumenstromrate bestimmt. Zur Steuerung und zum Absaugen der Luft über das OBST wurde das Kontrollsystem und die Pumpen des „Electrostatic Classifieres- Modell 3080“ der Firma TSI genutzt. Dieses besitzt ein hochempfindliches Massen-durchflusskontrollgerät, das den Durchfluss auf $\pm 0,05 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ genau einstellen und überwachen kann.



Gesamtvolumenstrom : Q elektrisches Feld : E
 Trägergasvolumenstrom : T
 Probengasvolumenstrom : $q = Q - T$
 Zuluftvolumenstrom : L

Abbildung 21: Schematischer Aufbau des radialen Beweglichkeitsspektrometers

Durch die laminaren Strömungsverhältnisse im inneren des RBS bildet der Probengasstrom eine dünne Schicht zwischen oberer Kondensatorplatte und dem Trägergasstrom. D.h. der eingeführte Probenstrom mischt sich nicht mit dem Trägerstrom. Erst im Bereich des Drahtgitters der OBST mischen sich Proben und Trägergasstrom und verlassen dann gemeinsam das innere des RBS. Die Spannungsversorgung erfolgte über Batterien und konnte im Bereich 0 V bis 30 V verändert werden. Der Abstand der Kondensatorplatten beträgt 3 cm.

Um die elektrische Mobilität der unangelagerten ^{218}Po -Cluster zu bestimmen hat man zwei mögliche Wege zur Auswahl:

- Differentielle Methode:

Saugt man unter den oben aufgeführten Bedingungen die Probenluft in das Spektrometer und zusammen mit dem Trägergas durch das Drahtgitternetz des OBST's, so werden sich die unangelagerten Folgeprodukte auf dem Gitter diffusiv abscheiden. Solange nun am Kondensator keine Spannung anliegt, wird der gesamte im Probenstrom befindliche unangelagerte Anteil, abzüglich der Abscheideverluste auf der Geräteoberfläche, dort abgeschieden. Erhöht man die Spannung schrittweise, werden im Plattenkondensator zusätzlich die geladenen ^{218}Po -Cluster in Abhängigkeit ihrer el. Mobilität abgeschieden. Das bedeutet aber, dass sich die Konzentration des am Gitter abgeschiedenen unangelagerten ^{218}Po verringern muss. Als Resultat sollte sich daher ein Beweglichkeitsspektrum in Abhängigkeit der angelegten Spannung ergeben, welches eine Treppenform besitzt. Aus dieser Treppenform ist auf die el. Mobilität des unangelagerten geladenen ^{218}Po zu schließen.

- **Integrale Methode:**

Eine weitere Möglichkeit das el. Mobilitätsspektrum, den Ladungszustand und damit die Größenverteilung zu bestimmen liegt in der Bestimmung des Abscheideortes, d.h. die Bestimmung von R_2 , der unangelagerten geladenen ^{218}Po -Cluster auf der Bodenplatte des Kondensators. Dazu wird auf der Bodenplatte des Kondensators deckungsgleich ein Kernspurdetektor (Typ MACROFOL) angebracht. Die Macrofol ist mit einer Detektorfolie überzogen und leitend mit der Kondensatorplatte verbunden. Beim Alphazerfall des ^{218}Po werden die in Richtung des Bodens emittierten Alphapartikel im Kernspurdetektor Spuren hinterlassen. Die Eindringtiefe hängt dabei vom Auftreffwinkel und der dem Alphateilchen verbleibenden Energie ab. Nach der Messung wird die Detektorfolie entfernt und entlang einer Mittelachse der Macrofol 10 2 cm durchmessende Scheiben ausgestochen und bezüglich ihres Abstandes zum Mittelpunkt der Kondensatorplatte markiert. Zusätzlich werden an fünf willkürlich gewählten Orten weitere Scheiben entnommen. Danach werden sie geätzt. So sollten einerseits Verunreinigungen der Probenoberfläche entfernt und andererseits die sich in der Detektoroberfläche befindlichen Spuren aufgeweitet werden. Der Ätzvorgang besteht aus drei Stufen. Der Vorätzung mit einem Gemisch aus KOH und $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$, im Verhältnis von 50:50, der elektrochemischen Ätzung bei einer Spannung von 1000 V und einer Frequenz von 3000 Hz und der Nachätzung. Der gesamte

Vorgang dauert 6 h. Anschließend werden die Proben mit Wasser abgespült und getrocknet. Das Auslesen der Spuren erfolgt mithilfe eines Mikroskops. Bei einem geballten Auftreten von Spuren auf einer Probe wird deren Abstand zum Mittelpunkt der Kondensatorplatte bestimmt und mit der gegenüberliegenden Probe abgeglichen. Finden sich auf beiden Proben passende Spuren mit demselben R_2 wird die zu diesem Abscheideort zugehörige elektrische Mobilität mit Gleichung (75) ermittelt.

4.8 Testmessungen mit dem RBS

4.8.1 Experimenteller Aufbau

Um vollständig unabhängig von Feuchte und Temperatureinflüssen zu sein wurde das RBS in eine Glovebox eingebaut. Diese hat ein Volumen von $0,34 \text{ m}^3$. Die in sie eingeführten Gase werden getrocknet und gefiltert (siehe Abb. 22). Als Radongasquelle diente ein Durchflussquelle der Firma Pylon Mod. Zur Einstellung einer bestimmten Radongaskonzentration, wurde über einen Bypass zusätzliche Luft in der Glovebox eingeführt. Um einen Überdruck in der Kammer zu vermeiden wurde die Luft mit der entsprechenden Rate aus der Box abgesaugt und zusammen mit der Abluft des RBS über Kohlefilter vom Radon gereinigt und über einen Überwachungsmonitor wieder an die Umgebung abgegeben.

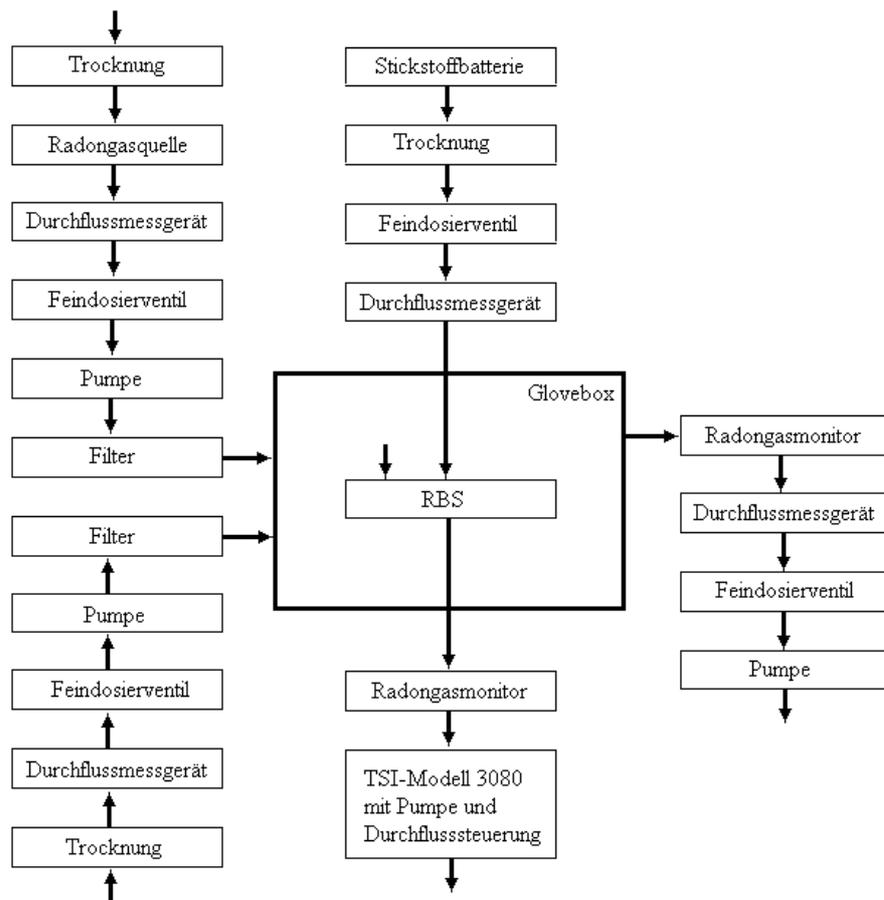


Abbildung 22: Schematische Darstellung der Gaszirkulation durch die Glovebox

4.8.2 Messung der Abscheideverluste auf der RBS-Oberfläche

Da es aufgrund des Aufbaus des RBS schwierig ist die Abscheideverluste zu berechnen, wurden diese über eine Vergleichsmessung des OBST-Messkopfes „open-face“ mit dem RBS bestimmt. Dazu wurde der OBST-Messkopf in 30 cm Abstand vom RBS mit dem Drahtgitternetz nach oben platziert. Zuerst wurde die Nullrate des RBS für diese Radongaskonzentration gemessen. Dazu wurde der Einlassschlitz mit einem Cellulosefilter abgedichtet. Die über diesen Filter von Radonfolgeprodukten gereinigte Luft wurde dann mit Gesamtvolumenraten von $11 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ und $13 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ durch das RBS gesaugt. Die RBS entstanden Radonfolgeprodukte wurden über die OBST registriert. Pro Gesamtvolumenstromereinstellung wurde diese Messung zehn Mal wiederholt. Jede Messung dauerte 1 h. Es ergab sich ein Korrekturfaktor von 0,04 cps auf die Zählrate des RBS. Danach wurde der Cellulosefilter wieder entfernt und die eigentliche Messung durchgeführt. Bei einer

Radongaskonzentration von $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ wurde das mit dem Probenstrom in das RBS gelangende unangelagerte ^{218}Po am mit dem OBST gemessen. Jede Einzelmessung dauerte wieder eine Stunde. Danach wurden die im RBS herrschenden Gasbedingungen in Hinsicht auf den Probengasstrom in der Box eingestellt und das Gas durch das „open-face“ OBST gesaugt. Auch hier wurden insgesamt 10 Messungen mit einer Dauer von je 1 h^{-1} durchgeführt. Als Mittelwerte für die Abscheideverluste ergeben sich aus diesen Messungen:

Mittelwert der Abscheideverluste bei $11 \text{ l}\cdot\text{h}^{-1}$: $(73\pm 13) \%$

Mittelwert der Abscheideverluste bei $13 \text{ l}\cdot\text{h}^{-1}$: $(69\pm 15) \%$

Etwa 70 % des unangelagerten ^{218}Po gehen damit durch Abscheidungsverluste verloren bevor sie das Drahtgitter der OBST erreichen. Um diese Verlustrate zu verringern wurden im Deckel des RBS radiale Bohrungen angebracht und an einem Anschluss zusammengeführt (siehe Abbildung 20). Saugt man über diesen Anschluss Luft an so werden die unangelagerten Radonfolgeprodukt in Richtung des Schlitzes beschleunigt, sie haben also weniger Zeit sich auf der Geräteoberfläche abzulagern. Die Messungen wurden bei einer Gesamtvolumenrate von $13 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ und einer Zusatzstromrate von $5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$: wiederholt:

Mittelwert der Abscheideverluste bei $13 \text{ l}\cdot\text{h}^{-1}$: $(60\pm 10) \%$

Es ist zu erkennen, dass es bei der Zusatzstromrate von $5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ zu einer Verbesserung im Abscheideverhalten des RBS von etwa 10 % kommt.

4.8.3 Messung des Abscheideverhaltens im el. Feld des RBS bei Variation der angelegten Spannung

Um festzustellen ob trotz der hohen Eingangsverluste eine Abnahme der Zählrate bei Erhöhung der am Kondensator angelegten Spannung zu messen ist, wurden bei einer Radongaskonzentration von $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ je vierzehn Messungen bei den Spannungen 0 V, 10 V, 20 V und 30 V durchgeführt. Die Ergebnisse finden sich in Tabelle 10 zusammengefasst. Aus den Messungen wird ersichtlich, dass innerhalb der Fehlertoleranz die hier durch die

Standardabweichung der Messreihen zu den verschiedenen Spannungen angegeben wird, kein Einfluss der angelegten Spannung auf das Abscheideverhalten zu beobachten ist. Bei einer Radongaskonzentration von $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ sollte bereits ab einer Spannung von etwa 5 V der gesamte geladene Anteil des ^{218}Po im elektrischen Feld des RBS abgeschieden sein. Bei dieser Radongaskonzentration liegt der geladene Anteil des unangelagerten ^{218}Po im Bereich von 20 %. Bezogen auf den Mittelwert der Messungen ohne angelegte Spannung von 0,11 cps bedeutet, dass Zählraten von etwa 0,08 cps zu messen gewesen wären. Aufgrund der mit den hohen Eingangsverlusten verbundenen schlechten Statistik ist das RBS derzeit nicht in der Lage eine solche Abnahme in der Zählrate mit einer hinreichenden Genauigkeit zu bestimmen.

Tabelle 10: Messung des el. Beweglichkeitsspektrum unter verschiedenen Spannungen; Angabe erfolgt in cps

Messung	Spannung [V]			
	0	10	20	30
1	0,09	0,04	0,07	0,2
2	0,11	0,05	0,05	0,14
3	0,05	0,09	0,13	0,16
4	0,07	0,13	0,15	0,04
5	0,14	0,17	0,09	0,07
6	0,07	0,13	0,11	0,09
7	0,13	0,07	0,14	0,11
8	0,2	0,03	0,06	0,07
9	0,05	0,12	0,01	0,15
10	0,17	0,16	0,17	0,21
11	0,14	0,03	0,06	0,06
12	0,09	0,05	0,09	0,04
13	0,08	0,08	0,13	0,08
14	0,16	0,14	0,17	0,17
Mittelwert	$0,11\pm 0,05$	$0,09\pm 0,05$	$0,1\pm 0,4$	$0,11\pm 0,07$

4.8.4 Messung des Abscheideverhaltens im el. Feld des RBS bei konstanter Spannung

Zur Messung des Abscheideverhaltens der geladenen unangelagerten ^{218}Po -Cluster auf der Kondensatorbodenplatte wurde bei einer Spannung von 10 V und einer Gesamtvolumenstromrate von $13 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ das Abscheidespektrum auf einem Kernspurdetektor aufgenommen. Unter diesen Bedingungen sollten sich zwei klar getrennte Kreise im Bereich von $R_2 = 5,8 \text{ cm}$ für Partikeldurchmesser im Bereich von 3 nm und im Bereich von $R_2 = 7,5 \text{ cm}$ für Partikeldurchmesser unterhalb von 1 nm bilden. Die Angabe der Spuren erfolgt pro Ätzfläche des Kernspurdetektors. Der Ausstechradius beträgt 1 cm und der Radius der auf diesem Plättchen geätzten kreisförmigen Fläche beträgt 0,7 cm. Zuerst wurde fünf Mal der durch das im RBS zerfallende Radon bestimmt, indem wieder die Boxenluft durch einen Cellulosefilter in das Spektrometer gesaugt wurde. Die Radongaskonzentration betrug $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und die Messdauer 3 h. Die Messung wurde zehn Mal wiederholt. Als Mittelwert dieser fünf Messungen ergab sich eine Spurdichte von 18 ± 4 Spuren pro Ätzfläche. Danach wurde der Cellulosefilter wieder entfernt und die Messung zehn Mal unter denselben Bedingungen wiederholt. Die Ergebnisse dieser Messungen finden sich in Tabelle 11. Der Nullwert wurde hier bereits vom gemessenen Wert abgezogen. Die Probennummern 1 und 10 bezeichnen die am Rand der Abscheidfläche ausgestanzten zu ätzenden Scheiben des Kernspurdetektors. Die Proben mit den Nummern 5 und 6 entstammen dem Zentrum der Abscheidefläche.

Tabelle 11: Messung der Abscheidung auf dem Kernspurdetektor bei einer festen Spannung von 10 V

Probenr.:	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Mittelwert der Spuren pro Ätzfläche aus den 10 Messungen	8	5	5	2	3	2	7	9	5	7

Auch hier ist es nicht möglich eine außerhalb der Fehlertoleranz liegende Zunahme der Spurendichte pro Ätzfläche festzustellen.

5. Messergebnisse

5.1 Geladener Anteil des ^{218}Po nach dem Radonzerfall

Der geladene Anteil des ^{218}Po wurde innerhalb von $3 \cdot 10^{-3}$ s nach der Bildung durch den Alphazerfall des Radons gemessen (Kapitel 4.5). Die Radongaskonzentration im Puffervolumen betrug $1000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, die Feuchte 8 % bei 20° C . Tabelle 12 fasst die Ergebnisse der zehn Messungen zusammen. Dabei ergibt sich die Messungenauigkeit des Mittelwerts der Messungen aus der Standardabweichung der gemessenen Werte. Demzufolge sind im Mittel $(87,3 \pm 1,6)$ % des unangelagerten ^{218}Po und den angegebenen Messbedingungen geladen. Es zeigt sich hier eine befriedigende Übereinstimmung mit dem in der Literatur angegebenen Wert, welcher von Wellisch 1913 [Wellisch 1913] experimentell ermittelt wurde.

Tabelle 12: Geladener Anteil des unangelagerten ^{218}Po $3 \cdot 10^{-3}$ s nach dem Radonzerfall

Messung	Geladener Anteil des ^{218}Po [%]
1	86,2
2	89,5
3	87,4
4	85,4
5	84,9
6	87,9
7	90,1
8	86,4
9	87,5
10	87,9
11	88,5
12	86,3
13	85,5
14	89,4
15	86,2
Mittelwert	87,3±1,6

5.2 Geladener Anteil des ^{218}Po und des ^{214}Pb unter Raumlufbedingungen

5.2.1 Geladener Anteil des unangelagerten ^{218}Po und des ^{214}Pb unter Variation der Radongaskonzentration bei verschiedenen Luftfeuchten

Der geladene Anteil des unangelagerten ^{218}Po wurde unter Raumlufbedingungen bestimmt. Die Radongaskonzentration ist einem Bereich von $50 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $5000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ in der 8 m^3 Kammer eingestellt worden. Damit bewegt sich die Ionendosisleistung zwischen $150\cdot 10^{-10} \text{ C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$ und $6300\cdot 10^{-10} \text{ C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$. Die durchschnittliche Aerosolkonzentration betrug (1200 ± 300) Partikel pro cm^3 . Bei 91 % bis 95 % und 35 % bis 38 % Feuchte der Luft (20° C) wurde der geladene Anteil des unangelagerten ^{218}Po in Abhängigkeit der Ionendosisleistung gemessen. (siehe Tabelle 13a-c). Bei einer relativen Feuchte der Kammerluft im Bereich von 14 % bis 18 % wurde zusätzlich zum geladenen unangelagerten Anteil des ^{218}Po , der des ^{214}Pb bestimmt (siehe Tabelle 13c). Die Messungenauigkeit ergibt aus dem statistischen Fehler der Zählraten. Sie beträgt für das ^{218}Po $(12\pm 6) \%$ und für das ^{214}Pb $(23\pm 9) \%$. Aufgrund der großen Messungenauigkeit bei der Bestimmung des geladenen Anteils des ^{214}Pb , wurde dieser lediglich in einem Feuchtebereich von 14 % bis 18 %, bei dem von einem hohen geladenen Anteil auszugehen war, gemessen. Zusätzlich zu den so ermittelten Werten des geladenen Anteils wurde auf Grundlage der gemessenen Werte des Radons, des gesamten unangelagerten Anteils und der Ionendosisleistung der geladene unangelagerte Anteil des ^{218}Po und des ^{214}Pb berechnet. Aus der Aerosolkonzentration und einem Anlagerungskoeffizienten von $\beta = 5\cdot 10^{-3} \text{ cm}^3\cdot\text{h}^{-1}$ wurde eine Anlagerungsrate von $X = 4,4 \text{ h}^{-1}$ errechnet. Der Anlagerungsparameter S_1 wurde als Mittelwert für die entsprechenden Daten der drei Messreihen gebildet ($S_1(15 \% \text{ r.H.}) = (30\pm 3) \text{ h}^{-1}$, $S_1(30 \% \text{ r.H.}) = (33\pm 3) \text{ h}^{-1}$, $S_1(95 \% \text{ r.H.}) = (34\pm 3) \text{ h}^{-1}$). Die Berechnung von S_1 erfolgt gemäß (44). Die Gesamtionendosisleistung I_g errechnet sich gemäß (73) aus der Radongaskonzentration (C_0) und den Konzentrationen des ^{218}Po (C_1) und des ^{214}Po (C_3/C_4). Die Hintergrundionendosisleistung I_h lag während der Experimente zwischen $48,3\cdot 10^{-10} \text{ C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$ und $55,9\cdot 10^{-10} \text{ C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$. Für die Berechnungen wurde ein Mittelwert von $50,8\cdot 10^{-10} \text{ C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$ verwendet. Die Ergebnisse der drei Messreihen finden sich in den Tabellen 14a-c zusammengefasst.

Tabelle 13a: Geladener Anteil (CF_{mess}) des unangelagerten ^{218}Po unter Variation der Radongaskonzentration im Bereich von $89 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $5000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und Feuchten von 91 % bis 95 %. Modellierter Anteil CF (rech) mit mittlerem Anlagerungsparameter $S_1 = \lambda_1 \cdot (C_0/C_1) = (34 \pm 3) \text{ h}^{-1}$, Anlagerungsparameter an Aerosole $X = 4,4 \text{ h}^{-1}$, mittlere Aerosolkonzentration $Z = (1200 \pm 300)$ Partikel pro cm^3 .

Nr.:	r.h. [%]	C_0 [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	C_1 [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	C_3/C_4 [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	C_1^f [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	I_g [$10^{-10}\text{C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$]	v [h^{-1}]	$CF_{\text{Po-218}}$ (rech) [%]	$CF_{\text{Po-218}}$ (mess) [%]
1	95	5300	2716	170	2096	6335	273	9,6	12,9
2	95	5136	2669	187	2119	6195	270	9,7	11,5
3	94	4812	2502	203	1901	5834	263	9,9	14,2
4	93	4566	2344	166	1926	5489	255	10,2	11
5	89	4100	2145	135	1690	4950	243	10,7	8,4
6	96	3233	1691	104	1293	3909	218	11,7	14,3
7	96	3008	1554	94	1209	3622	210	12,1	13,2
8	96	2782	1431	87	1084	3355	203	12,5	15,3
9	95	2519	1533	80	1007	3233	199	12,7	13,6
10	94	2278	1237	74	911	2804	187	13,4	13,2
11	93	1995	1063	72	818	2454	175	14,1	14,9
12	93	1407	727	45	556	1725	149	16,2	19
13	91	1162	618	37	459	1448	138	17,2	19,2
14	91	956	503	30	405	1194	127	18,4	21
15	95	867	452	27	329	1085	122	18,9	20
16	94	659	338	21	258	833	108	20,8	22,9
17	93	552	288	17	234	709	101	21,9	23
18	93	421	220	14	167	554	91	23,7	27,6
19	92	310	165	10	130	424	81	25,7	28
20	91	256	132	9	100	356	76	26,9	32
21	94	190	99	6	76	277	69	28,7	28,3
22	94	141	74	5	62	221	63	30,5	35,4
23	91	89	47	3	35	157	55	33,2	37

Tabelle 13b: Geladener Anteil (CF_{mess}) des unangelagerten ^{218}Po unter Variation der Radongaskonzentration im Bereich von $264 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $5041 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und Feuchten von 35 % bis 38 %. Modellierter Anteil CF (rech) mit mittlerem Anlagerungsparameter $S_1 = \lambda_1 \cdot (C_0/C_1) = (33 \pm 3) \text{ h}^{-1}$, Anlagerungsparameter an Aerosole $X = 4,4 \text{ h}^{-1}$, mittlere Aerosolkonzentration $Z = (1200 \pm 300)$ Partikel pro cm^3 .

Nr.:	r.h.	C_0	C_1	C_3/C_4	C_1^f	I_g	v	$CF_{\text{Po-218}}$ (rech)	$CF_{\text{Po-218}}$ (mess)
	[%]	[$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	[$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	[$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	[$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	[$10^{-10}\cdot\text{C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$]	[h^{-1}]	[%]	[%]
24	35	5041	2873	192	1845	6289	272	9,4	13,0
25	36	4870	2776	185	2077	6078	268	9,6	9,9
26	35	4689	2673	178	1793	5855	263	9,7	12,3
27	35	4543	2560	173	1975	5652	258	9,9	13,6
28	35	4454	2339	169	2063	5403	252	10,1	13,4
29	36	4402	2509	167	1917	5502	255	10,0	12,4
30	35	3952	2252	150	1787	4943	241	10,5	12,4
31	38	3186	1826	125	1232	4011	217	11,5	9,1
32	34	3053	1740	116	1293	3828	212	11,7	13,2
33	35	2560	1459	97	1064	3218	195	12,6	14,4
34	35	2211	1260	84	942	2786	181	13,4	13,3
35	34	2093	1193	80	912	2642	176	13,8	15,4
36	36	1775	1012	68	749	2248	163	14,7	12,4
37	36	1633	872	71	624	2035	155	15,3	17,4
38	38	1630	837	43	674	1976	153	15,5	13,4
39	35	1578	827	56	651	1948	151	15,6	18,5
40	55	1537	868	59	545	1943	152	15,5	17,3
41	35	1302	728	47	554	1648	139	16,7	16,7
42	39	812	457	31	314	1049	111	20,0	19,3
43	36	419	239	16	185	572	82	25,0	29,4
44	35	360	205	14	157	493	76	26,4	30,6
45	35	339	197	13	144	470	74	26,9	25,5
46	35	264	148	16	112	376	67	28,8	29,6

Tabelle 13c: Geladener Anteil (CF_{mess}) des unangeleragerten ^{218}Po und des ^{214}Pb unter Variation der Radongaskonzentration im Bereich von $100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $4020 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und einer Feuchte im Bereich von 14 % bis 18 %. Modellierter Anteil CF (rech) mit mittlerem Anlagerungsparameter $S_1 = \lambda_1 \cdot (C_0 / C_1) = (30 \pm 3) \text{ h}^{-1}$, Anlagerungsparameter an Aerosole $X = 4,4 \text{ h}^{-1}$, mittlere Aerosolkonzentration $Z = (900 \pm 300) \text{ Partikel pro cm}^3$.

Nr.	r.h.	C_0	C_1	C_1^f	C_2^f	C_3/C_4	I_g	v	$CF_{\text{Po-218}}$ (rech)	$CF_{\text{Po-218}}$ (mess)	$CF_{\text{Pb-214}}$ (rech)	$CF_{\text{Pb-214}}$ (mess)
	[%]	[$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]	[$10^{-10}\text{C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$]	[h^{-1}]	[%]	[%]	[%]	[%]				
47	14	4020	2553	1948	238	131	5441	217	10,5	9,1	8	15
48	16	3567	2217	1692	226	150	4676	201	11,3	10,4	9	8
49	18	3130	1910	1458	146	114	4112	188	11,9	16,4	10	9
50	17	2943	1507	1073	176	108	3574	176	12,6	14,7	15	11
51	18	2502	1582	1164	160	127	3315	169	13,1	16,8	11	15
52	18	2241	1337	1027	146	82	2873	157	13,9	16,2	12	7
53	14	1620	995	765	94	87	2156	136	15,7	18,4	13	13
54	15	1300	796	612	82	41	1702	121	17,2	19,4	15	16
55	14	1149	683	525	71	42	1524	115	18,0	21,7	16	17
56	15	1100	646	465	52	40	1448	112	18,3	24,1	18	11
57	16	1036	654	495	67	28	1407	110	18,6	16,7	16	12
58	16	905	529	430	37	36	1209	102	19,7	19,3	17	16
59	17	851	488	384	38	55	1130	99	20,2	25,1	19	11
60	15	576	346	257	42	21	787	82	23,3	21,0	22	15
61	16	518	302	239	33	22	706	78	24,1	28,3	22	14
62	16	500	300	217	14	5	693	77	24,4	27,2	24	34
63	17	478	311	235	25	18	686	77	24,4	20,1	20	20
64	16	351	219	165	22	14	511	66	27,2	24,5	25	27
65	14	301	184	134	22	11	434	61	28,6	28,1	28	17
66	15	252	136	118	9	8	363	56	30,3	33,6	29	31
67	16	207	124	95	7	5	315	52	31,8	32,5	31	29
68	16	112	68	54	5	4	193	41	36,7	33,1	35	22
69	14	100	61	47	4	3	180	39	37,8	38,7	37	33

Exemplarisch wird der Vergleich zwischen den theoretisch und den praktisch ermittelten Daten des geladenen Anteils für den Feuchtebereich von 14 % bis 18% in den Abbildungen 23 und 24 dargestellt. Abbildung 25 zeigt den Vergleich zwischen den gemessenen und modellierten Werten des geladenen Anteils des unangelagerten ^{218}Po in den Feuchte bereichen 14 % bis 18 % und 91 % bis 95 %. Die Ergebnisse der Messreihen bei drei unterschiedlichen Feuchtebereichen unter Variation der Radongaskonzentration zeigten einen geladenen Anteil des unangelagerten ^{218}Po , der in einem Bereich von 8 % bis 37 % lag. Für den Feuchtebereich von 91 % bis 95 % wurde ein geladener Anteil des unangelagerten ^{218}Po von etwa 10 % bis 33 % in Abhängigkeit der Ionendosisleistung gefunden. Für den Feuchtebereich von 35 % variierte der geladene Anteil von etwa 9 % bis 29 % und für den Feuchtebereich von 14 % bis 18 % variierte er von 8 % bis 37 %. Im Feuchtebereich von 30 % bis 95 % konnte innerhalb der Messgenauigkeit somit kein Einfluss der zunehmenden Feuchte auf den geladenen Anteil gefunden werden. Obgleich im Feuchtebereich von 14 % bis 18 % der gemessene geladene Anteil des unangelagerten ^{218}Po tendenziell höher liegt ist innerhalb der Messgenauigkeit keine eindeutige Aussage über den Feuchteeinfluss möglich (siehe Abbildung 25).

Der geladene Anteil des unangelagerten ^{214}Pb variierte von 8 % bis 33 % bei einer Feuchte von 14 % bis 18 % und der Variation der Radongaskonzentration. Die gemessenen Werte des geladenen Anteils des ^{214}Pb liegen tendenziell unwesentlich unter denen des ^{218}Po .

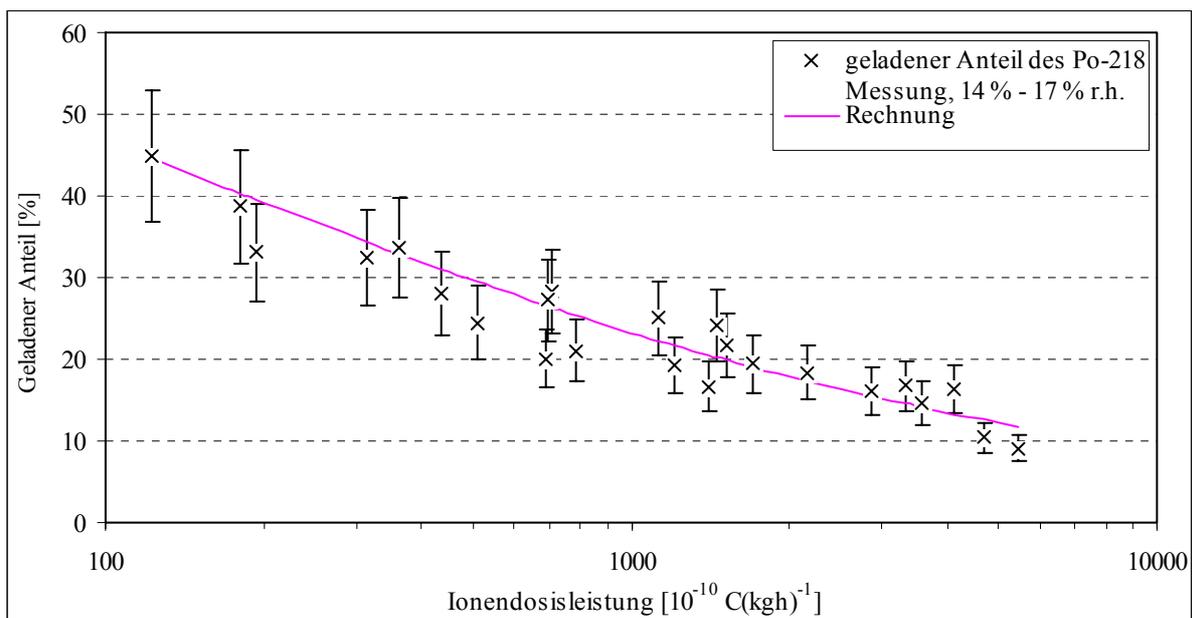


Abbildung 23: Vergleich zwischen gemessenen und modellierten Werten des geladenen Anteils des unangelagerten ^{218}Po in Abhängigkeit der Ionendosisleistung bei 14 % bis 17 %.

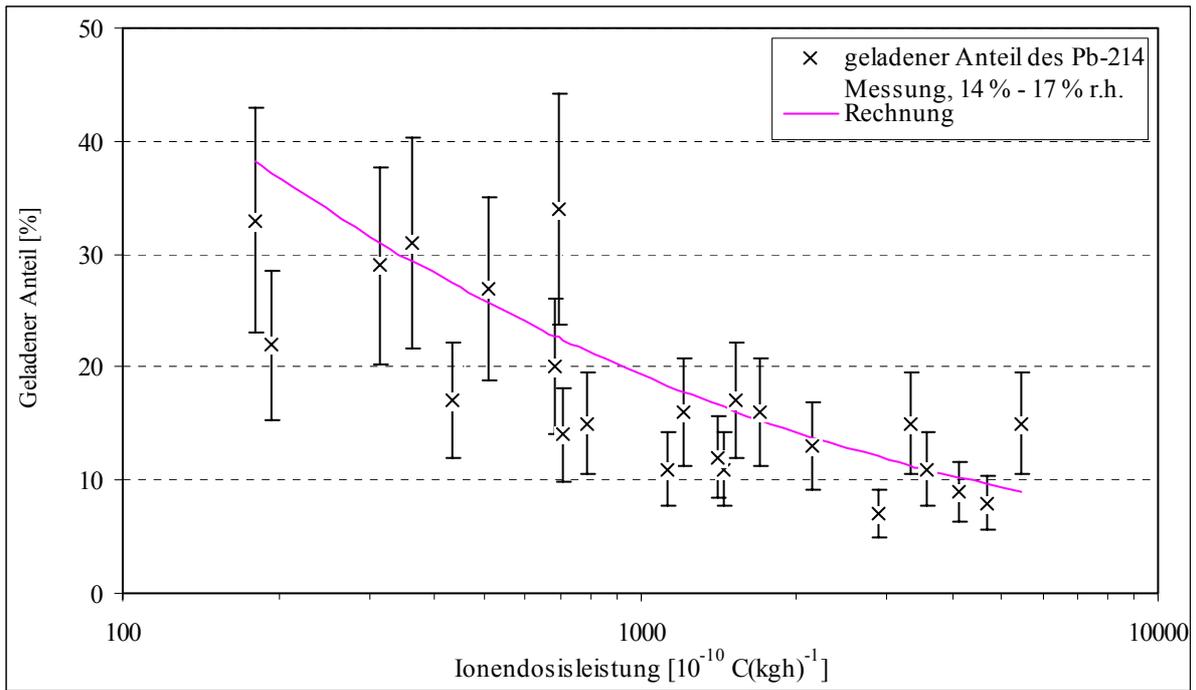


Abbildung 24: Vergleich zwischen gemessenen und modellierten Werten des geladenen Anteils des unangelagerten ^{214}Pb in Abhängigkeit der Ionendosisleistung bei 14 % bis 17 % r.H.

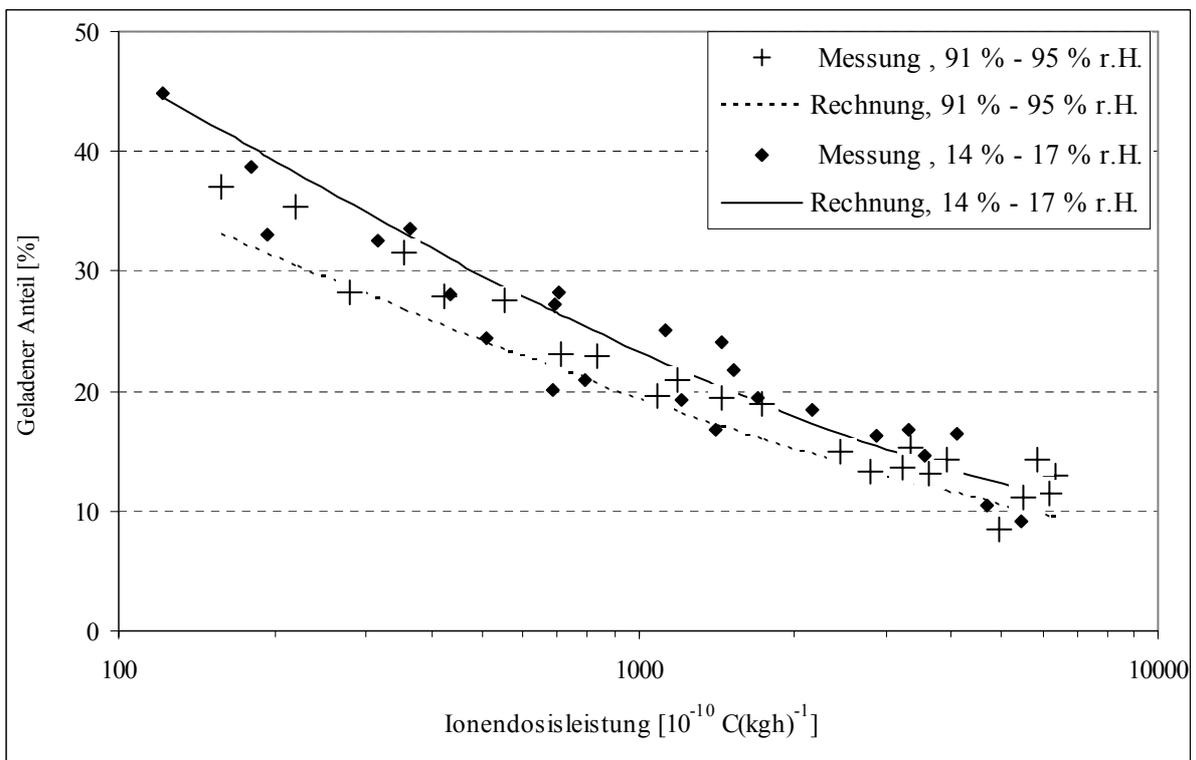


Abbildung 25: Vergleich zwischen gemessenen und modellierten Werten des geladenen Anteils des unangelagerten ^{218}Po in Abhängigkeit der Ionendosisleistung in den Feuchtebereichen 14 % bis 17 % und 91 % bis 95 %.

Im Vergleich der gemessenen und der modellierten Werte ist festzustellen, dass innerhalb der genannten Messgenauigkeiten eine befriedigende Übereinstimmung gefunden wurde. D.h. das Modell lässt sich auf die Verhältnisse in der Kammer und auch auf Räume anwenden. Damit sind Vorhersagen über den geladenen Anteil der unangelagerten Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb auch unter Messtechnisch schwierigen Bedingungen möglich, sofern die einflussnehmenden Parameter wie An /Ablagerungsraten etc. bestimmt werden.

5.2.2 Geladener Anteil des ^{218}Po und des ^{214}Pb verschiedenen Feuchten der Kammerluft und konstanter Radongaskonzentration

Zur weiteren Quantifizierung des Feuchteinflusses auf den geladenen Anteil und des Verhältnisses zwischen den geladenen Anteilen des unangelagerten ^{218}Po und des ^{214}Pb , wurde bei einer konstanten Radongaskonzentration von $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und drei Feuchtebereichen von 14 % bis 17 %, 33 % bis 34 % und 88 % bis 95 % je zehn Mal der geladene Anteil beider Folgeprodukte gemessen. Die Ergebnisse dieser Messungen finden sich zusammengefasst in der Tabelle 14a-c.

Tabelle 14a: Geladener Anteil (CF_{mess}) des unangelagerten ^{218}Po und des ^{214}Pb bei einer mittleren Radongaskonzentration von $(1141\pm 69) \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und Feuchten im Bereich von 88 % bis 95 %. Modellierter Anteil CF_{ger} mit mittlerem Anlagerungsparameter $S_1 = \lambda_1 \cdot (C_0 / C_1^i) = (29,9 \pm 2,3) \text{ h}^{-1}$, mittlere Aerosolkonzentration $Z = (900\pm 300) \text{ Partikel pro cm}^3$, $X = 4,4 \text{ h}^{-1}$.

C_0	C_1	C_3/C_4	C_1^f	C_2^f	I_g	v	S_1	$\text{CF}_{\text{Po-218}}$ (rech)	$\text{CF}_{\text{Po-218}}$ (mess)	$\text{CF}_{\text{Pb-214}}$ (rech)	$\text{CF}_{\text{Pb-214}}$ (mess)
$[\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$	$[\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$	$[\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$	$[\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$	$[\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$	$[\text{10}^{-10}\cdot\text{C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}]$	$[\text{h}^{-1}]$	$[\text{h}^{-1}]$	$[\%]$	$[\%]$	$[\%]$	$[\%]$
1100	720	35	542	72	1498	175	27,7	12,5	12,3	9,0	4
1077	704	46	553	79	1475	174	26,6	12,6	15,8	9,1	7
1001	595	30	559	53	1323	164	24,4	13,1	13,4	9,7	8
1157	610	38	495	42	1455	172	31,9	12,6	9,4	9,2	3
1201	633	39	503	67	1500	175	32,6	12,5	11,5	9,0	14
1135	695	30	564	56	1509	175	27,4	12,5	16,0	9,0	10
1187	651	42	522	71	1514	176	31,0	12,5	13,2	10,0	3
1231	652	45	518	69	1549	178	32,4	12,3	13,5	9,9	7
1194	672	28	520	38	1530	177	31,3	12,4	11,2	9,9	23
1130	635	41	458	52	1455	172	33,7	12,6	18,6	9,2	17
Mittelwerte							29,9±2,3	12,6±0,2	13,5±1,7	9,4±0,4	10±4

Tabelle 14b: Geladener Anteil (CF_{mess}) des unangelagerten ^{218}Po und des ^{214}Pb bei Radongaskonzentrationen im Bereich von $(1083\pm 38) \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und Feuchten im Bereich von 33 % bis 34 %. Modellierter Anteil CF_{ger} mit mittlerem Anlagerungsparameter $S_1 = \lambda_1 \cdot (C_0/C_1) = (29,1\pm 1,7) \text{ h}^{-1}$, mittlere Aerosolkonzentration $Z = (900\pm 300) \text{ Partikel pro cm}^3$, $X = 4,4 \text{ h}^{-1}$.

C_0 [Bq·m ⁻³]	C_1 [Bq·m ⁻³]	C_3/C_4 [Bq·m ⁻³]	C_1^f [Bq·m ⁻³]	C_2^f [Bq·m ⁻³]	I_g [10 ⁻¹⁰ C·(kgh) ⁻¹]	v [h ⁻¹]	S_1 [h ⁻¹]	$CF_{\text{Po-218}}$ (rech) [%]	$CF_{\text{Po-218}}$ (mess) [%]	$CF_{\text{Pb-214}}$ (rech) [%]	$CF_{\text{Pb-214}}$ (mess) [%]
1042	606	33	469	62	1353	145	30,3	14,5	13,6	10,6	8
1100	601	45	473	54	1408	148	31,7	14,3	15,2	10,4	15
1099	624	35	500	49	1423	149	30,0	14,2	17,9	10,3	11
1021	586	42	463	35	1336	144	30,1	14,6	17,8	10,7	5
1130	680	30	695	93	1499	153	22,2	13,9	10,2	11,0	14
1083	615	39	486	50	1411	149	30,4	14,3	14,1	10,3	11
1089	652	34	511	51	1442	150	29,1	14,1	16,7	10,2	9
1131	654	30	524	55	1471	152	29,4	14,0	12,1	10,1	16
1037	609	34	495	43	1360	146	28,6	14,5	11,3	10,5	14
1093	647	40	518	52	1436	150	28,8	14,2	18,1	10,2	7
Mittelwerte							29,1±1,7	14,3±0,3	14,7±1,9	10,4±0,3	11±4

Tabelle 14c: Geladener Anteil (CF_{mess}) des unangelagerten ^{218}Po und des ^{214}Pb bei er Radongaskonzentrationen im Bereich von $(1060\pm 35) \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und Feuchten von 14 % bis 17 %. Modellierter Anteil CF_{ger} mit mittlerem Anlagerungsparameter $S_1 = \lambda_1 \cdot (C_0/C_1) = (30,5\pm 2,2) \text{ h}^{-1}$, mittlere Aerosolkonzentration $Z = (900\pm 300) \text{ Partikel pro cm}^3$, $X = 4,4 \text{ h}^{-1}$.

C_0 [Bq·m ⁻³]	C_1 [Bq·m ⁻³]	C_3/C_4 [Bq·m ⁻³]	C_1^f [Bq·m ⁻³]	C_2^f [Bq·m ⁻³]	I_g [10 ⁻¹⁰ C·(kgh) ⁻¹]	v [h ⁻¹]	S_1 [h ⁻¹]	$CF_{\text{Po-218}}$ (rech) [%]	$CF_{\text{Po-218}}$ (mess) [%]	$CF_{\text{Pb-214}}$ (rech) [%]	$CF_{\text{Pb-214}}$ (mess) [%]
1010	592	27	455	56	1328	107	30,3	18,7	16,4	14,7	15
1056	629	31	472	48	1404	110	30,5	18,3	19,1	14,3	23
1100	646	34	465	52	1447	112	32,3	18,1	24,1	14,0	11
1084	618	35	454	44	1407	110	32,6	18,3	22,4	14,3	14
1091	665	45	502	38	1449	112	29,6	18,1	23,7	14,0	22
1035	643	34	505	63	1405	110	28,0	18,3	16,4	14,3	18
1036	654	29	495	67	1407	110	28,5	18,3	16,7	14,3	12
1104	603	33	446	45	1414	110	33,8	18,3	19,1	14,3	15
1067	629	38	480	37	1400	110	30,3	18,3	23,5	14,3	11
1017	610	30	479	35	1349	108	29,0	18,6	23,6	14,6	13
Mittelwerte							30,5±2,2	18,3±0,2	20,5±2,3	14,3±0,3	15±4

Im Ionendosisleistungsbereich von $1328\cdot 10^{-10} \text{ C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$ bis $1549\cdot 10^{-10} \text{ C}\cdot(\text{kg}\cdot\text{h})^{-1}$ waren im Feuchtebereich von 88 % bis 95 % im Mittel $(13,5\pm 1,7) \%$, im Feuchtebereich 31 % bis 34 % im Mittel $(14,7\pm 1,9) \%$ und im Feuchtebereich von 12 % bis 17 % im Mittel $(20,5\pm 2,3) \%$ des unangelagerten ^{218}Po positiv geladen. Unter denselben Bedingungen wurde für das

unangelagerte ^{214}Pb im Feuchtebereich von 88 % bis 95 % im Mittel ein geladener Anteil von (10 ± 5) %, im Feuchtebereich 31 % bis 34 % im Mittel ein geladener Anteil von (11 ± 4) % und im Feuchtebereich von 12 % bis 17 % im Mittel ein geladener Anteil von (15 ± 4) % gefunden. Im Feuchtebereich von 30 % bis 95 % lag damit der Einfluss durch die erhöhte Wasserdampfkonzentration innerhalb der Fehlertoleranz. D.h. für Feuchten oberhalb von 30 % wird die Neutralisation des geladenen Anteils der unangelagerten Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb hauptsächlich durch die Ionendosisleistung bestimmt. Der geladene Anteil des unangelagerten ^{214}Pb liegt im Mittel nur unwesentlich unterhalb dem des unangelagerten ^{218}Po . Es ist jedoch dasselbe Verhalten unter den verschiedenen Feuchten und der konstanten Ionendosisleistung zu beobachten. D.h. der geladene Anteil des unangelagerten ^{214}Pb gehorcht denselben Neutralisationsprozessen wie der des ^{218}Po . Im Vergleich zwischen den modellierter und den gemessenen Werten der geladenen Anteile der beiden unangelagerten Radonfolgeprodukte wurde innerhalb der Fehlertoleranzen wieder eine befriedigende Übereinstimmung gefunden. Damit bestätigen diese Messungen die Tendenzen der vorherigen Messreihen.

6. Zusammenfassung

Dosisrelevante Fakten wie Konzentration und Größenverteilung der kurzlebigen Radonfolgeprodukte werden stark beeinflusst durch den geladenen Anteil und den Ladungszustand des ersten Radonfolgeprodukts ^{218}Po . Die Ladung des ^{218}Po beeinflusst seine Beweglichkeit und damit die Anlagerung an Aerosole und die Ablagerung auf Oberflächen, das so genannte „plate-out“. Die Beweglichkeit wird durch den Diffusionskoeffizienten beschrieben.

Ziel dieser Arbeit war, sowohl theoretisch als auch praktisch den geladenen Anteil der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb unter Raumluftbedingungen zu bestimmen und ein elektrisches Beweglichkeitsspektrometer zu konzipieren und zu bauen.

Das von Jacobi [1972] entwickelte und von Porstendörfer et al. [1978] modifizierte Raummodell zur Berechnung der Konzentration der unangelagerten Radonfolgeprodukte in Innen- und Außenluft unter Gleichgewichtsbedingungen, wurde erweitert, um den geladenen und neutralen unangelagerten Anteils der Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb differenziert zu beschreiben.

Damit das Verhalten der Radonfolgeprodukte studiert werden konnte wurde eine 8 m^3 Kammer gebaut, in welcher sich Raumluftbedingungen in Bezug auf Radongaskonzentration und Luftfeuchte einstellen ließen. In der Kammer wurden der geladenen Anteil der unangelagerten Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb gemessen. Zur kontinuierlichen Messung der unangelagerten Folgeprodukte wurde die Online-Backscreen-Technik (OBST) entwickelt. Dabei werden die diffusiv aus einer laminaren Strömung auf einem Drahtgitternetz abgeschieden unangelagerten Radonfolgeprodukte über Alphaspektroskopie erfasst. Der gesamte Anteil der Folgeprodukte wird mithilfe der Filtermethode ermittelt. Darüber hinaus wurden alle zur Modellierung notwendigen Parameter wie Radongas-, Folgeprodukt- und Aerosolkonzentration, sowie die Luftfeuchte/Temperatur und die Ionendosisleistung erfasst.

Die Untersuchungen ergaben, dass unter Variation der Radongaskonzentration von $50\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $5000\text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und Luftfeuchten im Bereich von 15 % bis 95 %, etwa 10 % bis 60 % des unangelagerten ^{218}Po positiv geladen sind. Die Neutralisationsrate lag unter diesen

Bedingungen in einem Bereich von 40 h^{-1} bis 300 h^{-1} . Von den drei in Frage kommenden Neutralisationsprozessen, direkter Elektronentransfer, indirekter Elektronentransfer und Kleinionenrekombination, ist im Luftfeuchtebereich von 30 % bis 95 %, der von der Ionendosisleistung charakterisierte dritte Prozess dominant. Die Ionendosisleistung wird durch den Alphazerfall des Radons und seiner Folgeprodukte bestimmt und lag während dieser Experimente in einem Bereich von $51 \cdot 10^{-10} \text{ C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h})^{-1}$ bis $5080 \cdot 10^{-10} \text{ C} \cdot (\text{kg} \cdot \text{h})^{-1}$ ($20 \mu\text{R} \cdot \text{h}^{-1}$ bis $2000 \mu\text{R} \cdot \text{h}^{-1}$). Lediglich im unteren Feuchtebereich (14 % bis 18 %) ist ein Einfluss der Luftfeuchte auf den geladenen Anteil innerhalb der Messgenauigkeit zu beobachten. Die Messungenauigkeit betrug für das ^{218}Po (12 ± 6) %. Bei einer Radongaskonzentration von $1000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ waren im Feuchtebereich von 30 % bis 95 % etwa 14 % und im Feuchtebereich von 14 % bis 18 % etwa 20 % des unangelagerten ^{218}Po positiv geladen. D.h. bis zu einer Feuchte von 30 % r.H. ist eine zusätzliche Neutralisation des geladenen Anteils des ^{218}Po durch den von der Wasserdampfkonzentration abhängigen indirekten Elektronentransfer zu beobachten.

Die Bestimmung des geladenen unangelagerten Anteils des ^{214}Pb gestaltete sich schwieriger. Aufgrund der mit der Abreicherung der Folgeprodukte verbundenen schlechteren Statistik bei den Messungen liegt die Messungenauigkeit in einem Bereich von (23 ± 9) %. Die Messungen ergaben, dass im Mittel der geladene Anteil des unangelagerten ^{214}Pb nur unwesentlich unter dem des ^{218}Po liegt. Die Neutralisation des geladenen unangelagerten ^{214}Pb folgt jedoch denselben Gesetzmäßigkeiten wie die des ^{218}Po . Der Vergleich der gemessenen und modellierten Werte des geladenen Anteils der unangelagerten Radonfolgeprodukte ^{218}Po und ^{214}Pb zeigt, innerhalb der Fehlergrenzen eine befriedigende Übereinstimmung.

Auf Basis bestehender Erkenntnisse wurde ein radiales elektrisches Beweglichkeitsspektrometer (RBS) gebaut und erste Testmessungen durchgeführt. Das RBS ermöglicht prinzipiell zwei Methoden zur Bestimmung der elektrischen Mobilität der unangelagerten ^{218}Po -Cluster. Einerseits eine differentielle über den Abfall der Konzentration des am Drahtgitter der OBST abgeschiedenen Anteils des ^{218}Po bei Erhöhung der angelegten Spannung und bei laminarem konstanten Durchfluss. Andererseits eine integrale über die Bestimmung des Abscheideortes der ^{218}Po -Cluster am Boden des RBS. Dazu wurde auf der Bodenplatte des Radialkondensators ein leitend beschichteter Festkörperkernspurdetektor (Macrofol) angebracht. Die Messung wurde bei konstanter Spannung und konstantem laminarem Durchfluss durchgeführt. Unter den auferlegten Beschränkungen (Raumluft) für

die Messungen wurden in den Tests zwei Fehlerquellen entdeckt. Die eine besteht in den Eingangsverlusten, welche auch noch nach ersten Maßnahmen zu ihrer Verringerung etwa 60 % betragen. Dies führte unter anderem dazu, dass bei der Messung mit der OBST eine Standardabweichung von 50 % in den einzelnen Messreihen auftrat. Bei solchen Abweichungen war die Abnahme der Konzentration der am Drahtgitter abgeschiedenen ^{218}Po -Cluster nicht mehr zu beobachten. Die andere Fehlerquelle liegt in der Detektion der auf dem Festkörperkernspurdetektor abgeschiedenen ^{218}Po -Cluster. Ihre Abscheidung war zwar qualitativ nachweisbar, jedoch ließ sich dieses Ergebnis nicht in Hinsicht auf den Abscheideort quantifizieren. Die grundsätzliche Eignung des Spektrometers zur Messung der elektrischen Mobilität des ^{218}Po konnte jedoch bestätigt werden. Da die Kenntnis des Ladungszustandes und der Mobilitäts- bzw. Größenverteilung Aussagen über den immer noch nicht verstandenen Clusterbildungsprozess ermöglicht ist eine weitere Optimierung des Beweglichkeitsspektrometers in jedem Fall wünschenswert.

7. Anhänge

7.1 Literaturverzeichnis

Ahier, B.A.; Phillips, C.R.: *Response of the unattached ^{218}Po distribution in $\text{H}_2\text{O-SO}_2\text{-N}_2$ atmospheres.*

Health Physics, Vol. 61, No. 3, S. 375-385, 1990

Billard, F.; Bricard, J.; Cabane, M.; Madelaine, G.: *Etude des noyaux de condensation qui se forment dans l'obscurité et sous l'action de la lumière dans l'air exempt d'aérosols.*

C.R. Acad., Sci. Paris, Series B, 265, S. 1173-1176, 1967

Bricard, J.; Girod, P.; Pradel, J.: *Spectre de mobilité des petits ions radiactifs de l'air.*

C.R. Acad., Sci. Paris Parts, Groupe 6, 260, S. 6587-6590, 1965

Bricard, J.; Billard, F.; Blanc, D.; Cabane, M.; Fontan, J.: *Structure détaillée du spectre de mobilité des petits ions radioactifs dans l'air.*

C.R. Acad., Sci. Paris, Series B, 263, S. 761-764, 1966

Bricard, J.; Billard, F.; Madelaine, G.: *Formation and Evolution of Nuclei of Condensation that Appear in Air Initially Free of Aerosols.*

J. Geophys. Res. 73, S. 4487-4496, 1968

Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: *Umweltpolitik, Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 1996.*

Bonn, 1997

Busigin, A.; van der Vooren A.; Babcock, J.C.; Phillips, C.R.: *The nature of unattached RaA (^{218}Po) particles.*

Health Physics, Vol. 40, S. 333-343, 1981

Castelmann, Jr., A.W.: *Experimental Studies of Ion Clustering: Relationship to Aerosol Formation Processes and some Atmospheric Implications.*

J. Aerosol Sci Vol. 13, No. 1, S. 73-85, 1982

Castleman Jr., A.W.: *Consideration of the chemistry of radon progeny.*

Environmental Science technology, Vol. 25, No.4, S. 770-735, 1991

Cheng, Y.S.; Yeh, H.C.: *Theory of a Screen Type Diffusion Battery.*

J. Aerosol Science, Vol. 11, S. 313- 320, 1980

Chu, K.D.; Hopke, P.K.: *Neutralization Kinetics for Polonium-218.*

Environ. Sci. Technol. Vol. 22, No. 6, S. 711-717, 1988

Dankelmann, V.: *Kammerstudien zur Clusterbildung und Neutralisation von ^{218}Po in Umgebungsluft und anderen Trägergasen*

Dissertation Univ. Göttingen, 1998

Dankelmann, V.; Reineking, A.; and Porstendörfer, J.: *Determination of neutralisation rates of ^{218}Po ions in air.*

Radiation Protection Dosimetry 94, S. 353-357, 2001

Fissan, H.; Hummes, D.; Stratmann, F.; Büscher, P.; Neumann, F.; Pui, D.Y.H.; Chen, D.: *Experimental comparison of four differential mobility analyzers for nanometer aerosol measurements.*

Aerosol Sci. Tech. 24, S. 1-13, 1996

Fontan, J.; Blanc, D.; Huertas, M.L.; Marty, A.M.: *Mesure des la mobilite et du coefficient de diffusion des particules radioactives.*

Coroniti, S.C.; Hughes, J. (Edit.): Planetary Electrodynamics, Vol. 1, New York, Gordon and Breach, 1969

Frey, G.; Hopke, P.K.; Stukel, J.J.: *Effect of trace gases and water vapour on the diffusion coefficient of polonium-218.*

Science, Vol. 211, No. 30, S. 480-481, 1981

Fuchs, N.A.: *The Mechanics of Aerosols.*

Pergamon Press, Oxford, London, Edinburgh, New York, Paris, Frankfurt, 1964

Gormley, P; Kennedy, M.: *Diffusion for a stream flowing through cylindrical tube.*

Proc. R. Irish Acad., 52 A, S. 163, 1949

Goldstein, S.G.; Hopke, P.K.: *Environmental Neutralization of Po-218.*

Environ. Sci. Technol. Vol. 19, No. 2, S. 146-150, 1985

Hopke, P.K.: *Use of electrostatic collection of 218Po for measuring Rn.*

Health Physics, Vol. 57, No. 1, S. 39-42, 1989

Hopke, P.K.; Mesbah, B.; Fitzgerald, P.; Pourprix, M.: *A new technique to measure the mobility size distribution of ultrafine radioactive particles.*

Aerosol Sci. and Tech. 27, S. 381-393, Elsevier Science Inc., 1997

Hewitt, G.W.: *The charging of small particles for electrostatic precipitation.*

Trans. Am. Inst. Elec. Engrs. 76, S 300, 1957

Jacobi, W.; Andre, K.: *The vertical distribution of Radon 222 and Radon 220 and Their Decay Products in the Atmosphere.*

J. of Geophys.. Res. 68, S. 3799-3814, 1963

Jacobi, W.: *Activity and Potential α -Energy of 222Radon- and 220Radon-Daughters in different Air Atmospheres.*

Health Physics, Vol. 22, S. 441-450, 1972

Jacobi, W.: *Possible lung cancer risk from indoor exposure to radon daughters.*

Radiation Protection Dosimetry, Vol. 7, S. 395-401, 1984

Jacobi, W.; Einfeld, K.: *Dose issues and effective dose equivalent by inhalation of radon-222 and their short-lived daughters.*

GSF-Report s-65, Neuherberg, 1980

Knutson, E.O.; George, A.C.; Frey, J.J. Koh, B.R.: *Radondaughter plateout, Part II. Predictional Model.*

Health Phys., S. 445, 1983

Knutson, E.O.; Whitby, K.T.: *Aerosol classification by electrical mobility: apparatus, theory and applications.*

J. Aerosol Sci. 6, S. 443, 1975

Mercer, T.T.: *The Effect of Particle Size on the Escape of Recoiling RaB Atoms from Particulate Surfaces*

Health Phys. Vol 31, S. 173, 1976

Malolepsy, O.: *Einfluß der Luftfeuchte und der elektrischen Feldkräfte auf die elektrostatische Abscheidung von Radon- und Thoron-Folgeprodukte.*

Diplomarbeit Göttingen 1994

Mesbah, B.: *Le S.M.E.C. Le spectromètre de mobilité électrique circulaire. Théorie, performances et applications. Contamination contrôlée des surfaces. Granulométrie de l'aérosol fin.*

Commissariat a L'Energie Atomique, Rapport CEA-R-5693, 1995

Mohnen, V.: *Die radioaktive Markierung von Aerosolen.*

Z. d. Physik 229, S. 109-122, 1969

Pagelkopf, P.; Porstendörfer, J.: *Neutralisationrate and the fraction of the positive ^{218}Po -clusters in air.*

Atmosph. Environm, Elsevier Verlag, noch nicht erschienen

Porstendörfer, J.: *Die Diffusionskoeffizienten und mittleren freien Weglängen der geladenen und neutralen Radon-Folgeprodukte.*

Zeitschrift für Physik 213, S. 384-396, 1968a

Porstendörfer, J.: *Die experimentelle Bestimmung der Koeffizienten der Anlagerung der neutralen und elektrisch geladenen Radon-Folgeprodukte an Aerosole.*

Zeitschrift für Physik 217, S. 136-149, 1968b

Porstendörfer, J.: *Die Anlagerungsgeschwindigkeit der elektrisch geladenen un neutralen Emanationsfolgeprodukte an das atmosphärische Aerosol.*

Pure and Applied Geophysics 77, S. 175, 1969

Porstendörfer, J.; Reineking, A.; Becker, K.H.: *Free Fractions, Attachment Rates, and Plate-Out Rates of Radon Daughters in Houses.*

ACS-Symposium Series 331, S. 285-300, 1987

Porstendörfer, J.: *Properties and Behaviour of Radon and Thoron an Their Decay Products in the Air.*

J. Aerosol Sci Vol. 25, No. 2, S. 219-263, 1994

Porstendörfer, J.: *Physical parameters and dose factors of the radon and thoron decay products.*

Radiation Protection Dosimetry 94, 365-373. 2001

Porstendörfer, J.; Dankelmann, V.; Reineking, A.: *Neutralization of ^{218}Po -Clusters in Air.*

J. Aerosol Sci., Vol. 29, Suppl. 1, S1017-S1018, 1998

Porstendörfer J.; Mercer T.T.: *Concentration Distributions of Free and Attached Rn and Tn Decay Products in Laminar Aerosol Flow in a Cylindrical Tube.*

J. Aerosol Sci Vol. 9, S. 283-290, 1978

Porstendörfer, J.; Mercer, T.T.: *Influence of Electric Charge and Humidity upon the Diffusion Coefficient of Radon Decay Products.*

Health Phys. Vol 37, August, S. 191-199, 1979

Porstendörfer, J.; Röbig, G.; Ahmed, A.: *Experimental Determination of the Attachment Coefficients of Atoms and Ions on Monodisperse Aerosols.*

J. Aerosol Sci Vol. 10, S. 21-28, 1979

Porstendörfer, J.; Wicke, A.; and Schraub, A.: *The influence of exhalation, ventilation and deposition processes upon the concentration of radon and thoron and their decay products in room air.*

Health Physics 34, S. 465-473. 1978

Pourprix, M.; Daval, J.: *Electrostatic precipitation of aerosols on wafers, a new mobility spectrometer.*

Proceedings of the 3rd International Aerosol Conference: S. 797, Kyoto Japan, 1990

Raabe, O.: *Measurement of the diffusion coefficient of RaA.*

Nature, Vol. 217, S. 1143-1145, 1968

Raabe, O.: *Concerning the interactions that occur between radon decay products and aerosols.*

Health Physics, Vol. 17, S. 177-185, 1969

Raes, F.: *Description of the Properties of Unattached ^{218}Po and ^{212}Pb Particles by means of the Classical Theory of Cluster Formation.*

Health Phys. Vol 49, No. 6, S. 1177-1187, 1985

Raghunath, B.; Kotrappa, P.: *Diffusion coefficients of the decay products of radon and thoron.*

J. Aerosol Science, Vol. 10, S. 133-138, 1979

Rehs, B.: *Der Einfluss meteorologischer Parameter auf den Radon-Transport im Boden.*

Dissertation, Universität Göttingen, 1999

Reineking, A.; Becker K.H.; Porstendörfer, J.: *Measurements of the unattached fractions of radon daughters in houses.*

The Science of the Total Environment, Vol. 45, S. 261-270, 1985

Reineking, A.; Becker K.H.; Porstendörfer, J.: *Measurements of the short-lived radon daughters in the indoor and outdoor environment.*

Radiation Protection and Dosimetry, Vol. 24, S. 245-250, 1988

Reineking, A.; Porstendörfer, J.: „Unattached“ Fraction of Short-Lived Rn Decay Products in Indoor and Outdoor Environments: An Improved Single-Screen Method and Results.

Health Phys. Vol 58, No. 6, S. 715-727, 1990

Reineking, A.; Kesten, J.; Butterweck, G.; Porstendörfer, J.; Knutson, E.A.; George, A.C.; Solomon, S.B.: Size distribution of unattached and aerosol-attached short-lived radon decay products: Some results of intercomparison measurements.

1st International Workshop on Indoor Radon Remedial Action, Rimini Italy, 1993

Reineking, A.; Porstendörfer, J.; Dankelmann, V.; Wendt J.: Die Größenverteilung der unangeleragerten kurzlebigen Radonfolgeprodukte.

30. FS-Jahrestagung, Lindau am Bodensee, 28.9. – 2.10.1998, Bd. I, S. 503-508, 1998

Ramamurthi, M.; Hopke, P.K.: On Improving the Validity of Wire Screen „Unattached“ Fraction Rn Daughter measurements.

Health Phys. Vol 56, No. 2, S. 189-194, 1989

Roth, C.; Berlauer, U.; Heyder, J.: Particle size analytics of log-normally distributed ultra fine particles using a differential mobility analyser.

J. Aerosol Science, Vol. 20, No. 5, S. 547-556, 1989

Schmidt, V.: Untersuchungen zum Einfluss von Oberflächenablagerungen der kurzlebigen Zerfallsprodukte von Radon-222 auf die Messung und Beurteilung von Strahlenschutzgrößen in Wohnräumen.

Dissertation Technische Universität Freiberg, 2000

Shi, B., Hopke, P.K.: Study of ²¹⁸Po ions by small ion recombination in O₂, Ar and N₂.

Health Physics, Vol. 61, S. 209-214, 1991

Sonderholm, S.: Analysis of diffusion battery data.

J. Aerosol Science, 15, S. 673, 1979

SSK: Leitfaden zur Messung von Radon, Thoron und ihren Zerfallsprodukten.

Urban & Fischer, Band 47, 2002

Tanner, A.B.: *Radon migration in the ground: Supplementary review.*

3rd Symp. on nat. Rad. Envir. Conference, 780422, S. 5-76, 1978

UN Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: *Sources, effects and risk of ionizing radiation.*

United Nations Publications, New York, 1988

Wellisch, E.M.: *The distribution of active deposit of radium in an electric field.*

Philosophical Magazine 28, S. 623-635. (1913)

Wichmann, H.E.; Brüske-Hohlfeld, I.; Schaffrath-Rosario, A.: *Lungenkrebsrisiko durch Radonfolgeprodukte, Fall-Kontroll-Studie der GSF bei den ehemaligen Uranerzbergarbeitern der Wismut.*

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Forschung zum Problemkreis Radon, 15. Statusgespräch. Berlin Deutschland, 2002

Winkelmayer, W, Reichl, G.; Lindner, A.O.; Berner, A.: *A new electromobility spectrometer for the measurement of aerosol size distributions in the size range from 1 to 1000 nm.*

J. Aerosol Sci. 22, S. 289, 1991

Wicke, A.: *Untersuchungen zur Frage der natürlichen Radioaktivität der Luft in Wohn- und Aufenthaltsräumen. Grundlagen zur Abschätzung der Strahlenexposition durch Inhalation von Radon- und Thoron-Zerfallsprodukten.*

Dissertation, Fachbereich Physik der Justus-Liebig.-Universität Gießen 1979

Yeh, H.C.; Newton G.J.; Raabe O.G.; Boor D.R.: *Self charging of the ¹⁹⁸Au-labeled monodisperse gold aerosols studied with a miniature electrical mobility spectrometer.*

J. Aerosol Sci. 7, S. 245, 1976

Zock, C.: *Die Messung der Aktivitätsgrößenverteilung des radioaktiven Aerosols der Radonfolgeprodukte und deren Einfluß auf die Strahlendosis des Menschen.*

Dissertation Universität Göttingen 1996

7.2 Zusammenhang zwischen Diffusionskoeffizient und Teilchendurchmesser

Teilchendurchmesser d_p in nm	Diffusionskoeffizient D in $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	Teilchendurchmesser d_p in nm	Diffusionskoeffizient D in $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
0,50	1,96E-01	30,9	5,60E-05
0,64	1,21E-01	39,4	3,53E-05
0,81	7,42E-02	50,2	2,25E-05
1,04	4,57E-02	64,0	1,44E-05
1,32	2,82E-02	81,6	9,32E-06
1,68	1,74E-02	104	6,11E-06
2,14	1,07E-02	133	4,07E-06
2,73	6,60E-03	169	2,75E-06
3,48	4,07E-03	215	1,90E-06
4,44	2,51E-03	274	1,33E-06
5,66	1,55E-03	350	9,51E-07
7,21	9,60E-04	446	6,91E-07
9,19	5,94E-04	568	5,09E-07
11,7	3,69E-04	724	3,80E-07
14,9	2,29E-04	923	2,86E-07
19,0	1,43E-04	1176	2,17E-07
24,3	8,92E-05		