Ber. natmed. Ver. Innsbruck	Band 57 Festschr. Scheminzky	S. 71-93	Innsbruck, Dez.	1969
1	-			

# Eine Apparatur hoher Empfindlichkeit zur Messung der natürlichen Radioaktivität der Atmosphäre

#### von

Tilmann D. MÄRK

(Aus dem Forschungsinstitut Gastein der Österreichischen Akademie der Wissenschaften, Mitteilung-Nr. 345, und dem Institut für Physiologie und Balneologie der Universität Innsbruck; Vorstand beider Institute: Univ.-Prof. Dr. F. SCHEMINZKY)

#### A High-sensitivity Apparatus for Measuring Natural Atmospheric Radioactivity

Synopsis: The present paper reports briefly on the theory, design, calibration and checking of an apparatus based on a double-filter system. A collecting device consisting of an input filter, a decay chamber and an output filter is used to measure the concentrations of Rn 222, Rn 220 (thoron) and decay products in open air, room air and breathing air. This arrangement is based on a necessary high separation efficiency of the input filter. This efficiency was carefully investigated for the membran filter of cellulose nitrate (type MF 100 of the firm of Sartorius Göttingen, Germany) used here. It was shown that, even under the most unfavorable conditions, not more than  $5.10^{-6}$  of the decay products could pass through the input filter. After the collection period the a activity of both filters is measured for many hours in proportional or scintillation counters (background of the latter: 0.007 cpm per cm<sup>2</sup> of effective counting area). By means of the theory developed the concentration of radon 222, radon 220 (thoron), Pb 214 (RaB) and Pb 212 (ThB) can be determined separately from the decay curves. With a chamber volume of 25 liters, an effective filter diameter of 60 mm and a rate of air flow of about 40 liters per minute, radon concentrations of 0.145 pCi and thoron concentrations of 0.085 pCi per liter of air can still be measured after a collecting time of 15 hrs (relative error 25%). A further increase in detection sensitivity might be achieved by using larger chambers and larger filters. The open-air measurements carried out in Innsbruck yielded mean values of 0.213 pCi for. radon and 0.97 pCi for thoron (here measured for the first time), referred to one liter of air.

#### 1. Einleitung

Schon lange vor dem "Atomzeitalter" war die Menschheit einer ständigen Bestrahlung durch die in der gesamten Biosphäre vorkommenden natürlich radioaktiven Substanzen ausgesetzt. Es handelt sich bei diesen Stoffen im wesentlichen um die radioaktiven Elemente Uran und Thorium sowie deren zahlreiche, ebenfalls radioaktive Zerfallsprodukte.

Das natürlich vorkommende Uran besteht zu 99,3% aus dem Isotop U 238, das mit einer Halbwertszeit von 4,5.10° Jahren über einige Zwischenglieder zunächst in das Ra 226 zerfällt. Die weiteren Zerfallsprodukte dieser sogenannten Uran-Radium-Reihe ab Ra 226 zeigt Tab. 1. Der Rest, nämlich 0,7% des natürlichen Urans, besteht aus dem Isotop U 235, das ebenfalls eine Zerfallsreihe — die sogenannte Uran-Aktinium-Reihe — bildet, deren Glieder aber wegen der geringen Häufigkeit des Uranisotops für die natürliche Strahlenbelastung des Menschen praktisch keine Rolle spielen. Hingegen ist das Element Thorium (das zu 99,9% aus dem Radioisotop Th 232 besteht) etwa mit der gleichen Häufigkeit wie Uran in der Erdkruste vertreten. Die Zerfallsreihe des Th 232 ist ebenfalls in Tab. 1 dargestellt.

Uran-Radium-Reihe								Thorium-Reihe						
		Halbwe zeit	erts-	Strah	nlung	Isotop			Halbwe zeit	erts-	Strah	lung		
(U	238)	4,5.10	a	α	(7)	Th	(Th	232)	1,39.10	<sup>10</sup> a	a	(γ)		
						MsTh1	(Ra	228)	6,7	a	β			
en-						MsTh2	(Ac	228)	6,13	h	$\beta$ und	γ		
						RaTh	(Th	228)	1,91	a	a	(y)		
(Ra	226)	1622	a	a	(y)	ThX	(Ra	224)	3,64	d	a	(y)		
(Em	222)	3,825	d	a	(7)	Tn	(Em	220)	54,5	8	α	(ץ)		
(Po	218)	3,05	min	α		ThA	(Po	216)	0,158 -	8	α			
(Pb	214)	26,8	min	$\beta$ unc	łγ	ThB	(Pb	212)	10,64	h	$\beta$ und	γ		
(Bi	214)	19,72	min	$(a)\beta$	und y	ThC	(Bi	212)	60,47	min	α, β, ;	,		
(Po	214)	164	μs	a		→ThC′	(Po	212)	0,30	$\mu 8$	a			
' (Tł	210)	1,32	min	$\beta$ un	dγ	$_{\rightarrow}^{\dagger}$ ThC''	(Tl	208)	3,10	min	$\beta$ und	γ		
(Pb	210)	19,4	a	β	(y)	ThD	(Pb	208)	stabil					
(Bi	210)	5,013	d	β										
(Po	210)	138,4	d	α	(y)									
(Pb	206)	stabil												
	(U een- (Ra (Em (Po (Pb (Bi (Po (Bi (Po (Bi (Po (Pb	Ur (U 238) een- (Ra 226) (Em 222) (Po 218) (Po 214) (Po 214) (Po 214) (T1 210) (Pb 210) (Bi 210) (Po 210) (Po 210) (Pb 206)	Uran-Rad Halbwe zeit (U 238) 4,5.10* een- (Ra 226) 1622 (Em 222) 3,825 (Po 218) 3,05 (Pb 214) 26,8 (Bi 214) 19,72 (Po 214) 164 (T1 210) 1,32 (Pb 210) 19,4 (Bi 210) 5,013 (Po 210) 138,4 (Pb 206) stabil	Uran-Radium-R Halbwerts- zeit (U 238) 4,5.10° a en- (Ra 226) 1622 a (Em 222) 3,825° d (Po 218) 3,05 min (Pb 214) 26,8 min (Bi 214) 19,72 min (Po 214) 164 μs (Ti 210) 1,32 min (Pb 210) 19,4 a (Bi 210) 5,013 d (Po 210) 138,4 d (Pb 206) stabil	Uran-Radium-Reihe         Halbwerts- zeit       Strak- zeit         (U       238)       4,5.10°       a $\alpha$ (En       226)       1622       a $\alpha$ (Em       222)       3,825°       d $\alpha$ (Po       218)       3,05       min $\alpha$ (Po       214)       19,72       min $(\alpha)\beta$ (Po       214)       19,72       min $\beta$ und         (Po       214)       164 $\mu$ s $\alpha$ (Pb       210)       1,32       min $\beta$ und         (Pb       210)       19,4 $\alpha$ $\beta$ (Bi       210)       5,013 $d$ $\alpha$ (Pb       210)       138,4 $d$ $\alpha$ (Pb       206)       stabil $\Box$ $\Delta$	Uran-Radium-Reihe         Halbwerts- zeit       Strahlung zeit         (U       238)       4,5.10*       a $\alpha$ $\langle \gamma \rangle$ (U       238)       4,5.10*       a $\alpha$ $\langle \gamma \rangle$ (Halbwerts- zeit       Strahlung a $\langle \gamma \rangle$ (U       238)       4,5.10*       a $\alpha$ $\langle \gamma \rangle$ (Ra       226)       1622       a $\alpha$ $\langle \gamma \rangle$ (Em 222)       3,825       d $a$ $\langle \gamma \rangle$ (Po       218)       3,05       min $\alpha$ (Pb       214)       19,72       min $\beta$ und $\gamma$ (Bi       214)       19,72       min $\beta$ und $\gamma$ (Po       214)       164 $\mu$ s $\alpha$ (T1       210)       1,32       min $\beta$ und $\gamma$ (Pb       210)       19,44 $\beta$ $(\gamma)$ (Bi       210)       5,013 $d$ $\beta$ (Pb       210)       138,4 $d$ $\alpha$ $\langle \gamma \rangle$ (Pb       206)       stabil $\langle \gamma \rangle$ $\langle$	Uran-Radium-Reihe         Halbwerts- zeit       Strahlung zeit       Isotop         (U 238)       4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th         (U 238)       4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th         nen-       MsTh1       MsTh2       RaTh         (Ra 226)       1622       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th         (Pa 218)       3,05       min $\alpha$ $(\gamma)$ Th         (Po 218)       3,05       min $\beta$ und $\gamma$ ThA         (Po 214)       26,8       min $\beta$ und $\gamma$ ThB'         (Bi       214)       19,72       min $(\alpha)\beta$ und $\gamma$ ThC'         (Po 214)       164 $\mu$ s $\alpha$ $\rightarrow$ ThC' $\rightarrow$ ThC'         (Pb 210)       1,32       min $\beta$ und $\gamma$ ThD         (Bi       210)       19,4 $\alpha$ $\beta$ $(\gamma)$ ThD         (Bi       210)       5,013 $d$ $\alpha$ $(\gamma)$ ThD         (Bi       210)       138,4 $d$ $\alpha$ $(\gamma)$ ThD         (	Uran-Radium-Reihe         Isotop         Isotop         Isotop         Isotop         (U 238) 4,5.10° a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th         MsTh1       (Ra         nen-       MsTh2       (Ac         RaTh       (Th         (Ra 226) 1622 a $\alpha$ ( $\gamma$ )       ThA       (Ra         (Em 222) 3,825       d $\alpha$ $(\gamma)$ ThA       (Po         (Po 218) 3,05       min $\alpha$ $(\gamma)$ ThA       (Po         (Po 214) 26,8       min $\beta$ und $\gamma$ ThB'       (Pb         (Po 214) 19,72       min $(\alpha)\beta$ und $\gamma$ ThC'       (Po         (Po 214) 164 $\mu$ s $\alpha$ $\rightarrow$ ThC''       (TI         (Pb 210)       19,4 $\alpha$ $\beta$ $(\gamma)$ ThD       (Pb         (Bi<210)       5,013 $d$ <	Uran-Radium-Reihe       The strahlung zeit         Isotop         (U 238)       4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)         (U 238)       4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)         (U 238)       4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)         (U 238)       4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)         (Bu 238)       4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)         (men-       MsTh1       (Ra 228)         (Ra 226)       1622       a $\alpha$ $(\gamma)$ ThX       (Ra 224)         (Em 222)       3,825       d $\alpha$ $(\gamma)$ ThA       (Po 216)         (Po 218)       3,05       min $\alpha$ ThA       (Po 216)         (Pb 214)       164 $\mu$ s $\alpha$ $\rightarrow$ ThC'       (Po 212)         (Ti 210)       1,32       min $\beta$ und $\gamma$ ThD       (Pb 208)         (Bi 210)       5,013       d $\beta$ $(\gamma)$ ThD       (Pb 208)         <	Thorium-J         Halbwerts- zeit       Strahlung zeit       Isotop       Halbwer zeit         (U 238) 4,5.10° a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)       1,39.10         MsTh1       (Ra 228)       6,7       MsTh1       (Ra 228)       6,7         nen-       MsTh1       (Ra 228)       6,13       RaTh       (Th 232)       1,91         (Ra 226)       1622       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Em 220)       54,5         (Po 218)       3,05       min $\alpha$ $(\gamma)$ ThA       (Po 216)       0,158         (Pb 214)       26,8       min $\beta$ und $\gamma$ ThB'       (Pb 212)       10,64         (Bi 214)       19,72       min $(\alpha)\beta$ und $\gamma$ ThC'       (Po 212)       0,30         '(Ti 210)       1,32       min $\beta$ und $\gamma$ ThC'       (Po 212)       0,30         '(Ti 210)       1,32       min $\beta$ und $\gamma$ ThD       (Pb 208)       stabil         (Bi 210)       5,013       d $\beta$ $(\gamma)$ ThD       (Pb 208)       stabil         (Bi 210)       138,4 $d$	Thorium-Reihe       Thorium-Reihe         Halbwerts- zeit       Isotop       Halbwerts- zeit         (U 238) 4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)       1,39.10 <sup>10</sup> a         (U 238) 4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)       1,39.10 <sup>10</sup> a         (U 238) 4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)       1,39.10 <sup>10</sup> a         (U 238) 4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)       1,39.10 <sup>10</sup> a         (U 238) 4,5.10°       a $\alpha$ $(\gamma)$ Th       (Th 232)       1,39.10 <sup>10</sup> a         nen-         MsTh1       (Ra 228) $6,7$ a         (Ra 226)       1622       a $\alpha$ $(\gamma)$ ThX       (Ra 224) $3,64$ d         (Em 220)       3,825       d $\alpha$ $(\gamma)$ ThA       (Po 216) $0,158$ s         (Po 218)       3,05       min $\beta$ und $\gamma$ ThB'       (Pb 212) $0,047$ min         (T1<210)       1,32       min<	Uran-Radium-Reihe       Thorium-Reihe         Halbwerts-zeit       Strahlung       Isotop       Halbwerts-zeit       Strahlung         (U 238) 4,5.10°       a $\alpha$ ( $\gamma$ )       Th       (Th 232) 1,39.10 <sup>10</sup> a $\alpha$ (U 238) 4,5.10°       a $\alpha$ ( $\gamma$ )       Th       (Th 232) 1,39.10 <sup>10</sup> a $\alpha$ (U 238) 4,5.10°       a $\alpha$ ( $\gamma$ )       Th       (Th 232) 1,39.10 <sup>10</sup> a $\alpha$ (u 238) 4,5.10°       a $\alpha$ ( $\gamma$ )       Th       (Th 232) 1,39.10 <sup>10</sup> a $\alpha$ (u 238) 4,5.10°       a $\alpha$ ( $\gamma$ )       Th       (Th 232) 1,39.10 <sup>10</sup> a $\alpha$ (u 238) 4,5.10°       a $\alpha$ ( $\gamma$ )       Th       (Ra 228) 6,7 $\alpha$ $\beta$ nen-          MsTh2       (Ac 228) 6,13 $h$ $\beta$ und         (Ra 226) 1622 $a$ $\alpha$ ( $\gamma$ )       ThX       (Ra 224) 3,64 $d$ $\alpha$ (Em 222) 3,825       d $a$ ( $\gamma$ )       ThA       (Po 216) 0,158 $s$ $a$ (Po 218) 3,05       min $\beta$ und $\gamma$ ThB'       (Pb 210) 0,164 $h$		

Tab. 1: Die Nuklide der Uran-Radium- sowie der Thorium-Reihe, deren Halbwertszeit und Strahlung. In Klammer angegebene Strahlenarten haben eine Emissionshäufigkeit < 5% pro Zerfallsakt.</p>

Unter den Zerfallsprodukten beider Reihen spielen die Isotope des Elementes "Emanation" eine besondere Rolle, da es sich bei diesem Element — zum Unterschied zu den anderen Zerfallsprodukten der Reihen — um ein Edelgas handelt.

Wir bezeichnen im folgenden das Isotop Em 222, das in der Zerfallsreihe des Ra 226 vorkommt, als Radon<sup>1</sup> und das entsprechende Glied in der Thorium-Reihe, nämlich Em 220, als Thoron. Die besondere Bedeutung dieser radioaktiven Edelgase liegt darin, daß sie aus Bodenkapillaren, Gesteinsspalten und Wässern ständig in die Atmosphäre diffundieren und dadurch samt den aus ihnen entstehenden Zerfallsprodukten überall in der Luft vorhanden sind. Durch die Atmung werden sowohl die Edelgase Radon und Thoron als auch deren Zerfallsprodukte, wobei letztere zumeist an Aerosole angelagert sind, inkorporiert. Die Edelgase gelangen über die Lunge und den Blutkreislauf in alle Körpergewebe, werden aber auf dem umgekehrten Weg auch wieder ausgeschieden, so daß es bald zur Ausbildung eines Löslichkeitsgleichgewichtes zwischen Körpergewebe und Einatmungsluft kommt. Die in der Luft enthaltenen Zerfallsprodukte werden hingegen im Atemtrakt akkumuliert, zum Teil können sie aber - wie vor allem die Untersuchungen von POHL (1962, 1965, 1966) und POHL und POHL-RULING (1967, 1968) gezeigt haben - über den Blutkreislauf auch in andere Organe und Gewebe des Körpers gelangen. Zur Berechnung der daraus dem Körper erwachsenden Strahlenbelastung ist deshalb die Kenntnis des Gehaltes der Luft sowohl an Radon und Thoron als auch an Zerfallsprodukten notwendig.

Seit es MACHE und RIMMER (1906) gelang, erstmalig Radon in der Atmosphäre direkt festzustellen, wurden zur Messung der Emanationen und ihrer Zerfallsprodukte in der Luft verschiedene Methoden entwickelt. Das Hauptaugenmerk galt aber immer dem Radon und seinen Zerfallsprodukten, weil es infolge seiner längeren Halbwertszeit (3,825 Tage) wesentlich leichter als das Thoron (54,5 Sekunden) meßbar ist. Erst in den letzten Jahren finden sich in der Literatur Angaben über Apparaturen zum Nachweis des Thoron. So mißt zum Beispiel ISRAEL und ISRAEL (1965) mit einer Kombination von Zerfallskammer und Ionisationskammer direkt den Thorongehalt der Freiluft. FONTAN, BLANC und BOUVILLE (1962) machen erstmals genauere Angaben zur sogenannten *Doppel/iltermethode*. Eine modifizierte Anordnung nach diesem Prinzip beschreibt auch JACOBI (1964). Dem Verfasser wurde im Jahre 1966 als Dissertationsthema die Aufgabe gestellt, eine Apparatur zu entwickeln, welche folgende Forderungen erfüllen sollte:

- 1. Nachweis von Thoron auch in Gegenwart sehr viel höherer Radonaktivitätskonzentrationen (wie sie z. B. im Raum von Badgastein vorkommen).
- 2. Höchstmögliche Empfindlichkeit für den Nachweis von Thoron.
- 3. Synchrone Messung des Emanationsgehaltes zugleich mit dem Zerfallsproduktgehalt der jeweiligen Luftprobe.
- 4. Mechanische Unempfindlichkeit der Meßapparatur, da Messungen auch in Bergwerken und im Gelände vorgesehen waren.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Heute ist es üblich, das Element Emanation selbst als Radon zu bezeichnen, die Isotope desselben müssen dann immer durch Zusatz der Massenzahl unterschieden werden. Im folgenden ist aber – um die Schreibweise zu vereinfachen – unter Rn nur das Isotop 222 zu verstehen.

5. Messung der Ausatemluft von Personen mit einem Körperdepot an den Muttersubstanzen des Thoron.

Das Studium der verschiedenen Meßverfahren zeigte, daß alle diese Anforderungen am besten durch die *Doppel/iltermethode* zu erfüllen sind. Die oben gestellten Anforderungen machten aber eine Weiterentwicklung und genaue theoretische und experimentelle Untersuchungen des Doppelfiltersystems notwendig.

Die vorliegende Arbeit bringt in Kurzform die Theorie, den Bau und die Eichung sowie die Erprobung der Doppelfilterapparatur.

Eine ausführliche und erschöpfende Behandlung findet sich bei MARK (1968).

#### 2. Prinzip und Theorie der Doppelfilterapparatur

#### 2. 1. Doppelfiltermethode

Die Messung der Emanationen ist prinzipiell nach zwei Methoden möglich, einmal direkt, indem man den Zerfall der Emanationen selbst mißt, oder indirekt, indem man die aus den Emanationen entstehenden Tochtersubstanzen zur Messung heranzieht. Die Doppelfiltermethode ist eine indirekte Methode, bei der die Zerfallsprodukte, die in definierter Weise vom zu messenden Radon und Thoron stammen, isoliert, abgeschieden und gemessen werden.



Abb. 1: Schematische Darstellung der Doppelfilteranordnung.

Die Apparatur besteht aus einem Eingangsfilter, einer Zerfallskammer mit Unterdruckmanometer, einem Ausgangsfilter, einer leistungsfähigen Pumpe und einer Gasuhr (vgl. Abb. 1). Das Eingangsfilter  $F_a$  muß alle in der zu untersuchenden Luft bereits vorhandenen Zerfallsprodukte der Emanationen restlos abscheiden. Hinter dem Eingangsfilter enthält die Luft also nur mehr Radon und Thoron. Je nach Größe der Durchströmungsgeschwindigkeit zerfällt von den Emanationen ein mehr oder weniger großer Teil innerhalb der Zerfallskammer. Die dort entstandenen Zerfallsprodukte werden nun am Ausgangsfilter  $F_c$  abgefangen. Nach Ende der Sammelzeit werden die auf  $F_a$  und  $F_c$  abgelagerten Zerfallsprodukte in *a*-Zählern (vgl. 3. 3.) gemessen und der zeitliche Verlauf der Aktivitäten (die sogenannten Zerfallskurven) aufgenommen. Die Analyse dieser Zerfallskurven ermöglicht es — nach entsprechender Eichung der Apparatur — den Gehalt der untersuchten Luft an Radon, Thoron und deren Zerfallsprodukten zu berechnen.

## 2. 2. Auswertung des Ausgangsfilters F<sub>c</sub>

Um von der nach Ende der Sammelzeit gemessenen Aktivität<sup>2</sup> des Ausgangsfilters  $F_c$  auf den Radon- und Thorongehalt der untersuchten Luft zu schließen, ist eine genaue Theorie des Zerfalls von Radon und Thoron in der Kammer sowie der darauffolgenden Akkumulation der Zerfallsprodukte auf dem Ausgangsfilter zu entwickeln. Daraus läßt sich dann der zeitliche Verlauf der Aktivität des Filters nach Ende der Sammelzeit berechnen.

Da in unserem Fall die Filter zur Erreichung eines kleinen Leereffektes in  $\alpha$ -Zählern gemessen wurden, werden folgende Zerfallsprodukte des Filters  $F_c$  zur Messung im Zähler herangezogen: RaA, RaC (RaC' ist im Gleichgewicht mit RaC, deshalb ergibt die Messung der  $\alpha$ -Strahlung des RaC' immer die Aktivität des RaC), ThA und ThC (ThC zerfällt dual, ein Zweig unter  $\alpha$ -Strahlung in ThC'', der andere Zweig als  $\beta$ -Strahler in ThC', das aber mit außerordentlich kurzer Halbwertszeit unter  $\alpha$ -Emission weiterzerfällt; vgl. Tab. 1). Die Aktivität des RaA und ThA ist jedoch bis zum Beginn der Messungen (nach Beendigung der Sammelzeit müssen die Filter ausgespannt, in die Zähler eingelegt und die Zähler mit Zählgas gespült werden) praktisch schon auf Null zurückgegangen. Man kann also zur Auswertung der Zerfallskurven nur den zeitlichen Verlauf der C-Aktivitäten verwenden, der aber selbstverständlich auch von den auf dem Filter abgelagerten Aktivitäten der A- und B-Glieder abhängt.

Aus den allgemeinen Umwandlungsgesetzen für die Zerfallsreihen berechnen sich aus dem Zerfall in der Kammer und der Akkumulation auf dem Filter  $F_c$  für die Zerfallsprodukte RaA, RaB, RaC, ThA, ThB und ThC folgende Aktivitäten  $\bar{A}_{RaA}$ .... $\bar{A}_{ThC}$  am Ende der Sammelzeit:

$$\bar{\mathbf{A}}_{\mathbf{RaA}}\left(\mathbf{d}\right) = \boldsymbol{\Phi} \,\mathbf{a}_{\mathbf{Ra}}^{\mathbf{L}} \,\mathbf{f}_{\mathbf{11}}\left(\mathbf{d}\right) \mathbf{f}_{\mathbf{2}}\left(\boldsymbol{\vartheta}\right) \tag{1}$$

$$\mathbf{\tilde{A}}_{\text{RaB}}\left(d\right) = \boldsymbol{\varPhi} \mathbf{a}_{\text{Rn}}^{\text{L}}\left\{f_{12}\left(d\right)f_{2}\left(\vartheta\right) + f_{13}\left(d\right)f_{4}\left(\vartheta\right)\right\}$$
(2)

$$\tilde{A}_{RaC} (d) = \varPhi a_{Rn}^{L} \{ f_{14} (d) f_{2} (\vartheta) + f_{15} (d) f_{4} (\vartheta) + f_{16} (d) f_{7} (\vartheta) \}$$
(3)

$$\bar{\mathbf{A}}_{\mathrm{ThA}} \left( \mathbf{d} \right) = \boldsymbol{\varPhi} \mathbf{a}_{\mathrm{Tn}}^{\mathrm{L}} \mathbf{g}_{12}^{\prime} \left( \mathbf{d} \right) \mathbf{g}_{2} \left( \vartheta \right) \tag{4}$$

$$\dot{A}_{ThB} (d) = \Phi a_{Tn}^{L} \{ g_{14} (d) g_{2} (\vartheta) + g_{15} (d) g_{4} (\vartheta) \}$$
(5)

$$\bar{A}_{ThC} (d) = \Phi a_{Tn}^{L} \{ g_{17} (d) g_{2} (\vartheta) + g_{15} (d) g_{4} (\vartheta) + g_{19} (d) g_{6} (\vartheta) \}$$
(6)

 $<sup>^2</sup>$  Auf eine Messung des Ausgangsfilters  $F_c$  *während* der Sammelzeit wurde verzichtet, da nur dadurch die Zerfallskammer unabhängig von den Zählapparaturen auch in schwierigem Gelände aufgestellt werden konnte.

wobei:

- β [s] . . . Verweilzeit der Luft in der Kammer
   d [s] . . . Sammelzeit
   Φ [l·s<sup>-1</sup>] Strömungsgeschwindigkeit in der Kammer
   a<sup>L</sup><sub>Rn</sub> [p Ci·l<sup>-1</sup>] Radonkonzentration der zu untersuchenden Luft in der Kammer
   a<sup>L</sup><sub>Tn</sub> [p Ci·l<sup>-1</sup>] Thoronkonzentration der zu untersuchenden Luft in der Kammer
- $f_i, g_i$ . . . Funktionen von d oder  $\vartheta$ , vgl. Tab. 2.
- Tab. 2: Bedeutung der in den Formeln vorkommenden Funktionen  $f_i$  und  $g_i$ : Für die Funktionen  $f_i$  gilt  $\lambda_1 = \lambda_{Rn}, \lambda_2 = \lambda_{RaA}, \lambda_3 = \lambda_{RaB}, \lambda_4 = \lambda_{RaC}$  und analog für die  $g_i$   $\lambda_1 = \lambda_{Tn}, \lambda_2 = \lambda_{ThA}, \lambda_3 = \lambda_{ThB}, \lambda_4 = \lambda_{ThC}$ . Diese  $f_i$  und  $g_i$  wurden an der elektronischen Rechenanlage der Universität Innsbruck für alle in Frage kommenden Zeiten berechnet und sind bei MÄRK (1968) als Funktionstafeln dargestellt.

$$\begin{split} f_{2}, g_{2} &= \left(e^{-\lambda_{1}t} - e^{-\lambda_{4}t}\right) \frac{\lambda_{2}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} \\ f_{4}, g_{4} &= \lambda_{2} \lambda_{3} \left(\frac{e^{-\lambda_{1}t}}{(\lambda_{3} - \lambda_{1})(\lambda_{2} - \lambda_{1})} + \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{(\lambda_{3} - \lambda_{2})(\lambda_{2} - \lambda_{2})} + \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{(\lambda_{1} - \lambda_{3})(\lambda_{2} - \lambda_{3})}\right) \\ f_{7}, g_{4} &= \lambda_{3} \lambda_{3} \lambda_{4} \left(\frac{e^{-\lambda_{1}t}}{(\lambda_{4} - \lambda_{1})(\lambda_{3} - \lambda_{1})(\lambda_{3} - \lambda_{1})} - \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{(\lambda_{2} - \lambda_{2})(\lambda_{2} - \lambda_{2})(\lambda_{2} - \lambda_{1})} + \right. \\ &+ \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{(\lambda_{4} - \lambda_{3})(\lambda_{2} - \lambda_{3})(\lambda_{3} - \lambda_{1})} + \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{(\lambda_{4} - \lambda_{1})(\lambda_{2} - \lambda_{4})(\lambda_{4} - \lambda_{3})}\right) \\ f_{8}, g_{3}'' &= \lambda_{3} \lambda_{4} \left(\frac{e^{-\lambda_{4}t}}{(\lambda_{4} - \lambda_{2})(\lambda_{2} - \lambda_{2})} + \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{(\lambda_{2} - \lambda_{3})(\lambda_{4} - \lambda_{3})} - \frac{e^{-\lambda_{4}t}}{(\lambda_{2} - \lambda_{4})(\lambda_{4} - \lambda_{3})}\right) \\ f_{9}, g_{7} &= \left(e^{-\lambda_{4}t} - e^{-\lambda_{4}t}\right) \frac{\lambda_{4}}{(\lambda_{4} - \lambda_{2})} f_{10}, g_{8} = e^{-\lambda_{4}t} \\ f_{11}, g_{12}' &= \frac{1}{\lambda_{2}} \left(1 - e^{-\lambda_{4}t}\right) \\ f_{12}, g_{14} &= \frac{1}{\lambda_{2}} \left(1 - e^{-\lambda_{4}t}\right) \\ f_{12}, g_{14} &= \frac{1}{\lambda_{2}} \left(1 - e^{-\lambda_{4}t}\right) \\ f_{14}, g_{17} &= \frac{1}{\lambda_{2}} \left(1 - \frac{\lambda_{3} \lambda_{4}}{(\lambda_{4} - \lambda_{4})(\lambda_{2} - \lambda_{3})}e^{-\lambda_{4}t} + \frac{\lambda_{2} \lambda_{4}}{(\lambda_{4} - \lambda_{3})(\lambda_{2} - \lambda_{3})}e^{-\lambda_{4}t}\right) \\ f_{14}, g_{18} &= \frac{1}{\lambda_{3}} \left(1 - \frac{\lambda_{4} \lambda_{4}}{\lambda_{4} - \lambda_{3}}e^{-\lambda_{4}t} + \frac{\lambda_{3}}{\lambda_{4} - \lambda_{3}}e^{-\lambda_{4}t}\right) \\ f_{14}, g_{19} &= \frac{1}{\lambda_{4}} \left(1 - e^{-\lambda_{4}t}\right) \end{split}$$

Wären die Aktivitäten  $\bar{A}_{RaA} \dots \bar{A}_{ThC}$  zur Zeit t = d auf dem Filter  $F_c$  bekannt, könnte man aus den gegebenen Formeln die gesuchten Aktivitäten  $a_{Rn}^L$  und  $a_{Tn}^L$  bei bekanntem  $\vartheta$ , d und  $\varPhi$  berechnen. Es ist aber unmöglich, die Filteraktivität der einzelnen Glieder zur Zeit t = d zu messen (schon das Ausspannen der Filter und das Vorspülen der Zähler erfordert eine gewisse Zeit). Es ist deshalb notwendig, den zeitlichen Verlauf der Filteraktivitäten nach Beendigung der Sammelzeit über viele Stunden zu verfolgen. Erst die Analyse dieser Zerfallskurve (bei hohen Aktivitäten genügen einige wenige Meßpunkte, während bei kleinen Aktivitäten wegen des statistischen Fehlers möglichst viele Meßpunkte aufgenommen werden sollten) gestattet es dann, auch die Zerfallsprodukte des Radon von denen des Thoron zu unterscheiden. Unter neuerlicher Verwendung der allgemeinen Umwandlungsgesetze für Zerfallsreihen erhält man für den zeitlichen Verlauf der Aktivitäten der C-Glieder folgende Gleichungen (die Zeitzählung T beginnt mit dem Ende der Sammelzeit):

$$A_{RaC}(T) = f_{8}(T) \bar{A}_{RaA} + f_{9}(T) \bar{A}_{RaB} + f_{10}(T) \bar{A}_{RaC}$$
(7)

$$\mathbf{A}_{\mathrm{ThC}}(\mathbf{T}) = \mathbf{g}_{3}^{``}(\mathbf{T})\,\mathbf{\bar{A}}_{\mathrm{ThA}} + \mathbf{g}_{7}(\mathbf{T})\,\mathbf{\bar{A}}_{\mathrm{ThB}} + \mathbf{g}_{8}(\mathbf{T})\,\mathbf{\bar{A}}_{\mathrm{ThC}}$$
(8)

wobei  $\bar{\mathbf{A}}_{\text{RaA}}$  ...  $\bar{\mathbf{A}}_{\text{TbC}}$  in den Gl. (1) bis (6) definiert sind.

Die gemessene Aktivität  $A_c$  des Filters wird aber aus zwei Gründen immer kleiner als der hier theoretisch berechnete Wert sein. Erstens werden nicht alle aus den Emanationen in der Kammer entstandenen Tochtersubstanzen auf dem Filter  $F_c$ akkumuliert werden; ein Bruchteil dieser Zerfallsprodukte bleibt nämlich auf dem Weg durch die Zerfallskammer an der Wand hängen und wird dort abgelagert ("Wandeffekt"). Das Verhältnis der tatsächlich auf dem Filter abgelagerten Zerfallsprodukte zu den aus den Emanationen insgesamt entstandenen sei *Nutzel/fekt*  $W_{Rn}$  bzw.  $W_{Tn}$  genannt. Zweitens erfassen die verwendeten Zähler wegen der Zählgeometrie und der Selbstabsorption der Strahlung in den Filtern nur einen Teil der emittierten  $\alpha$ -Partikel, was durch Einführung des *Zählerwirkungsgrades*  $E_z$  berücksichtigt werden muß.

Es gilt somit: 
$$A_{RaC}(T)_{gemessen} = W_{Rn} \cdot E_z \cdot A_{RaC}(T)_{berechnet}$$
 (9)

$$\mathbf{A}_{\mathrm{ThC}}\left(\mathrm{T}\right)_{\mathrm{gemessen}} = \mathbf{W}_{\mathrm{Tn}} \cdot \mathbf{E}_{\mathrm{z}} \cdot \mathbf{A}_{\mathrm{ThC}}\left(\mathrm{T}\right)_{\mathrm{berechnet}}$$
(10)

Zur Berechnung der Radonkonzentration der untersuchten Luft bringt man Gl. (7) mit Hilfe der Gl. (1), (2) und (3) in folgende Form:

$$A_{RaC} (T)_{bcreehnet} = a_{Rn}^{L} X (\vartheta, d, T, \Phi)$$
(11)

Daraus folgt unter Verwendung von Gl. (9) die Eichformel für Radon:

$$\mathbf{a}_{\mathrm{Rn}}^{\mathrm{L}} = \frac{\mathbf{A}_{\mathrm{Rac}} \left( \mathrm{T} \right)_{\mathrm{gemessen}}}{\mathbf{X} \left( \vartheta, \mathrm{d}, \mathrm{T}, \boldsymbol{\Phi} \right) . \mathbf{W}_{\mathrm{Rn}} . \mathbf{E}_{\mathrm{z}}}$$
(12)

77

Theoretisch würde demnach zur Berechnung von  $a_{Rn}^{L}$  die Messung von  $A_{RaC}$  zu einem einzigen Zeitpunkt T genügen. Wegen des großen statistischen Meßfehlers bei kleinen Aktivitäten muß man in der Praxis jedoch die ganze gemessene Zerfallskurve zur Auswertung heranziehen. Es wurde deshalb die Funktion  $A_{RaC}$  (T) berechnet  $/ a_{Rn}^{L} \cdot \boldsymbol{\Phi}$ für verschiedene Verweilzeiten  $\vartheta$  und Sammelzeiten d berechnet und als Normkurven im halblogarithmischen Maßstab gezeichnet (Abb: 2 zeigt solche Kurven für  $\vartheta = 40$  s). Mit Hilfe dieser Normkurven kann man durch Vergleich mit der experimentell gewonnenen Zerfallskurve<sup>3</sup> für eine bestimmte Zeit T einen Wert für



 $A_{RaC}$  (T) gemessen ablesen und damit aus Gl. (12) die Radonkonzentration der Luft berechnen. Dieser Wert  $a_{Rn}^{L}$ bezieht sich aber auf die (infolge des Unterdruckes in der Zerfallskammer) verdünnte Luft und muß noch auf den <sup>1</sup>Druck der Außenluft umgerechnet werden.

Die Zerfallsprodukte des Radon sind nach  $T \ge 7$ Stunden infolge ihrer kurzen Halbwertszeiten vollständig zerfallen. Nach diesem Zeitpunkt mißt man also nur mehr die vom Thoron stammenden Zerfallsprodukte. Durch Vergleich der experimentell

Abb. 2: Aktivitätsverlauf des RaC auf dem Filter  $F_c$  für  $\vartheta = 40$  s und verschiedene , Sammelzeiten d in Abhängigkeit von der Meßzeit T.

<sup>3</sup> Bei gleichzeitiger Gegenwart von Thoron erhält man diese experimentelle Kurve für die Radonzerfallsprodukte, indem man von der gemessenen Sammelkurve ( $A_{RaC} + A_{ThC}$ ) den durch das Thoron verursachten Anteil  $A_{ThC}$  abzieht. Dies gelingt durch Berechnung der theoretischen Zerfallskurve der Thoronzerfallsprodukte mittels des nach  $T \ge 7$  Stunden (vgl. später) bestimmten Thorongehaltes. erhaltenen Zerfallskurve<sup>4</sup> mit den theoretisch berechneten Kurven erhält man analog wie bei der Bestimmung des Radongehaltes — für eine bestimmte Zeit T die Aktivität  $A_{ThC}$  (T) gemessen.<sup>1</sup>

Wie aus Gl. (8) zusammen mit den Gl. (4), (5) und (6) ersichtlich ist, gilt:

$$A_{\text{ThC}} (T)_{\text{berechnet}} = a_{\text{Tn}}^{\text{L}} Y (\vartheta, d, T, \boldsymbol{\Phi})$$
(13)

 $(g_3'' \text{ und } g_8 \text{ sind für } T \ge 7 \text{ Stunden gleich Null}).$ 

Unter Verwendung von Gl. (10) lautet die Eichformel für Thoron:

$$a_{Tn}^{L} = \frac{A_{ThO}(T)_{gemessen}}{Y(\vartheta, d, T, \Phi) W_{Tn} E_{z}}$$
(14)

Die in den Eichformeln (12) und (14) vorkommenden theoretischen Werte  $X(\vartheta, d, T, \Phi)$  und  $Y(\vartheta, d, T, \Phi)$  sind Summen und Produkte der verschiedenen Funktionen  $f_i$  und  $g_i$  (Tab. 2). Diese  $f_i$  und  $g_i$  wurden an der elektronischen Rechenanlage der Universität Innsbruck für alle in der Praxis in Frage kommenden Zeiten berechnet und sind bei MARK (1968) als Funktionstafeln dargestellt.

# 2.3. Auswertung des Eingangsfilters $F_a$

Alle in der Luft vorhandenen Radionuklide mit Ausnahme der gasförmigen Emanationen werden am Eingangsfilter abgeschieden. Man kann daher aus der Analyse der Aktivität des Eingangsfilters den Gehalt der Luft an festen radioaktiven Substanzen berechnen. Zur vollständigen Auswertung wird die  $\alpha$ -Aktivität des Filters über einige Tage gemessen. Man kann im allgemeinen auf dem Filter drei Komponenten unterscheiden:

- 1. Kurzlebige Zerfallsprodukte des Radon, die innerhalb von 7 Stunden zerfallen (das aus ihnen entstehende RaF kann in den meisten Fällen vernachlässigt werden).
- 2. ThB bis ThC'', die nach 3 Tagen zerfallen sind.
- 3. Langlebige radioaktive a-Strahler (z. B. Uran oder Thorium enthaltende Staubpartikel). Diese langlebige Komponente kann ab dem dritten Tag gemessen werden und muß als konstanter Betrag bei der Berechnung der Radonund Thoron-Zerfallsprodukte abgezogen werden. Waren aber auf dem Filter sehr große Aktivitäten an RaA bis RaC', kann ein kleiner Teil der nach 3 Tagen beobachteten a-Aktivität auch vom RaF herrühren, das beim Zerfall des RaC über RaD und RaE gebildet wurde. In diesem Fall müßte die a-Aktivität des Filters noch längere Zeit verfolgt werden und eine Auswertung wäre nach
  - den Gleichungen (6) bis (8) bei POHL (1965) möglich, soll hier aber nicht näher behandelt werden.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> Nach  $T \ge 7$  Stunden hat der Abfall der ThC-Aktivität im halblogarithmischen Maßstab die Form einer Geraden, entsprechend der Halbwertszeit des ThB (laufendes Gleichgewicht zwischen ThC und ThB).

1. Berechnung des Gehaltes an Radon-Zerfallsprodukten. Analog wie beim c-Filter berechnet sich auch hier der zeitliche Verlauf der Aktivität nach Ende der Sammelzeit des zur Messung gelangenden RaC mit Hilfe der allgemeinen Zerfallsgleichungen.

Man erhält:

$$A_{\text{RaC}} (T) = \Phi \{ a_{\text{RaA}}^{\text{L}} [f_8 (T) f_{11} (d) + f_9 (T) f_{12} (d) + f_{10} (T) f_{14} (d)] + a_{\text{RaB}}^{\text{L}} [f_9 (T) f_{13} (d) + f_{10} (T) f_{15} (d)] + a_{\text{RaC}}^{\text{L}} f_{10} (T) f_{16} (d) \}$$
(15)

wobei:

 $a_{RaA}^{L}$  [pCi.l<sup>-1</sup>] ... RaA-Konzentration in der Luft  $a_{RaB}^{L}$  [pCi.l<sup>-1</sup>] ... RaB-Konzentration in der Luft  $a_{RaC}^{L}$  [pCi.l<sup>-1</sup>] ... RaC-Konzentration in der Luft

Für kurze Sammelzeiten (z. B.: d = 5 Minuten) kann man aus der Form der Zerfallskurven<sup>5</sup> ziemlich genaue Aussagen über das Verhältnis  $a_{RaA}^{L} : a_{RaB}^{L} : a_{RaC}^{L}$  in der Luft machen. Solche Untersuchungen sind bei POHL (1962, 1965) beschrieben. Mit zunehmender Sammelzeit wird jedoch die Analyse immer ungenauer. Das Zerfallsprodukteverhältnis in der Luft läßt sich aber auch theoretisch mit Hilfe der sogenannten Austauschtheorie berechnen, wobei allerdings eine Anzahl von Faktoren (Exhalationsrate, Diffusionskoeffizient, Turbulenzverhältnisse der Atmosphäre usw.) bekannt sein müssen. Für die Freiluft berechnete JACOBI (1962) die Zerfallsproduktverhältnisse in verschiedenen Abständen vom Boden und bei verschiedenen Turbulenzverhältnissen.

Sowohl aus der Theorie wie auch aus den Experimenten ergibt sich, daß bei ruhiger Luft, geringer Beweglichkeit des Aerosols und größerem Abstand von den Radonquellen die kurzlebigen Zerfallsprodukte mit dem Radon nahezu ins Gleichgewicht kommen können. Je stärker aber Vorgänge wirksam werden, die einen Abtransport an Zerfallsprodukten verursachen, desto stärker geraten die Zerfallsprodukte in Unterschuß zum Radon; jedoch für die einzelnen Glieder der Reihe wegen der verschiedenen Halbwertszeiten in unterschiedlichem Maße.

Bei der Messung des Radon und des Thoron mittels der Doppelfiltermethode müssen zur Erzielung einer genügend hohen Meßgenauigkeit im allgemeinen lange Sammelzeiten d in Kauf genommen werden. Das Zerfallsprodukteverhältnis ist dann nicht mehr aus der Form der Kurven bestimmbar. Dadurch kann die Auswertung normalerweise nur eine Information über den Gesamtgehalt an kurzlebigen Radonzerfallsprodukten geben. Bei genauerer Untersuchung sieht man aber, daß die RaB-Konzentration in der Luft auch ohne Kenntnis des Zerfallsprodukteverhältnisses aus dem gemessenen  $A_{RaC}$  wenigstens annähernd berechenbar ist. Nimmt man nämlich für ein bestimmtes  $A_{RaC}$  (T) gemessen verschiedene mögliche Zerfallsprodukte-

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> Man zeichnet sich auch hier für die verschiedenen Sammelzeiten und Zerfallsprodukteverhältnisse  $a_{RaA}^{L} : a_{RaB}^{L} : a_{Ra0}^{L}$  theoretische Normkurven, die man mit der experimentellen Kurve vergleicht, wobei bei Anwesenheit von Thoronzerfallsprodukten diese erst von der Sammelkurve abgezogen werden müssen.

verhältnisse an und rechnet sich damit die Werte für  $a_{RaA}^{L}$ ,  $a_{RaB}^{L}$  und  $a_{RaO}^{L}$  aus, so ergibt sich, daß der Wert des RaB ziemlich unabhängig vom jeweiligen angenommenen Zerfallsprodukteverhältnis ist, während  $a_{RaA}^{L}$  und  $a_{RaO}^{L}$  stark von diesem abhängen. Zur Berechnung des RaB-Gehaltes ist es deshalb am einfachsten, anzunehmen, daß  $a_{RaA}^{L}$ :  $a_{RaB}^{L}$ :  $a_{RaO}^{L} = 1:1:1$  ist. Gleichung (15) läßt sich dann in der Form schreiben:

$$\mathbf{A}_{\text{RaC}}\left(\mathbf{T}\right) = \mathbf{a}_{\text{RaB}}^{\text{L}:} \mathbf{Z}\left(\mathbf{d}, \mathbf{T}, \boldsymbol{\Phi}\right) \tag{16}$$

Es folgt somit die Eichformel:

$$a_{RaB}^{L} = \frac{A_{RaC} (T)_{gemessen}}{Z (d, T, \Phi) E_{z}}.$$
 (17)

2. Berechnung des Gehaltes an Thoronzerfallsprodukten. Im allgemeinen wird sich auf dem Eingangsfilter ein Gemisch aus Radon- und Thoronzerfallsprodukten befinden. Nach längstens 7 Stunden sind die kurzlebigen Radonzerfallsprodukte (auch wenn sie in sehr großem Überschuß vorlagen) zerfallen, so daß sich nur mehr ThB bis ThC'' auf dem Filter befinden. Die theoretische Zerfallskurve des ThC für Zeiten  $T \geq 7$  Stunden lautet:

$$A_{ThC}(T) = \Phi g_7(T) \{ a_{ThA}^L g_{14}(d) + a_{ThB}^L g_{15}(d) \}$$
(18)

wobei gilt:

 $a_{ThA}^{L}$  [pCi.1<sup>1</sup>] .... ThA-Konzentration in der untersuchten Luft

 $a_{\text{ThB}}^{L}$  [pCi.l<sup>-1</sup>] ... ThB-Konzentration in der untersuchten Luft:

Da nun g15 » g14 ist, folgt für das allein berechenbare ThB die Eichformel:

$$a_{\rm ThB}^{\rm L} = \frac{A_{\rm ThC} (T)_{\rm gemessen}}{g_7 (T) g_{15} (d) \, \Phi \, {\rm E_z}}$$
(19)

Um auch zu einer Aussage über  $a_{ThO}^L$  zu kommen, müßte man das Verhältnis  $a_{ThB}^L: a_{ThO}^L$  kennen. Dieses Verhältnis ist aber nicht bestimmbar, da dazu die Zerfallskurve der Thoronzerfallsprodukte in einem Bereich T < 7 Stunden bekannt sein müßte. In diesem Bereich sind aber im allgemeinen noch die Radonzerfallsprodukte den Thoronzerfallsprodukten überlagert.

## 3. Technische Ausführung, experimentelle Prüfung und Eichung der Apparatur

Die Nachweisempfindlichkeit der Meßapparatur für Radon und Thoron ist abhängig von der Kammergröße V, dem Luftdurchsatz  $\Phi$  und der Verweilzeit  $\vartheta$  der durchgesaugten Luft. Diese drei Größen sind jedoch nicht voneinander unabhängig, sondern es gilt:  $V = \Phi . \vartheta$  (20)

Zudem wird die Empfindlichkeit noch vom Wandeffekt der Zerfallskammer und dem Wirkungsgrad und Leereffekt der verwendeten Zähler beeinflußt. Sind diese Größen bekannt, können aus der erforderlichen Nachweisempfindlichkeit die Mindestwerte für V und  $\Phi$  abgeschätzt werden.

## 3. 1. Wahl der Filter sowie Messung ihres Abscheidewirkungsgrades

Die verwendeten Filter müssen einen außerordentlich guten Abscheidewirkungsgrad haben (was besonders für das Eingangsfilter gilt, da bereits geringste Mengen durchgelassener Zerfallsprodukte die Bestimmung der Emanationsgehalte verfälschen würde), wobei aber die Eindringtiefe des abgelagerten Aerosols nur gering sein darf, um die Selbstabsorption der a-Strahlung im Filtermaterial klein zu halten. Diese beiden Forderungen werden - wie bereits POHL (1962) beschrieben hat am besten von den sogenannten Membranfiltern aus Zellulosenitrat erfüllt<sup>6</sup>. Naturgemäß erlaubt der hohe Abscheidewirkungsgrad dieser Filter nur einen relativ geringen Luftdurchsatz pro Flächeneinheit, so daß der erforderliche gesamte Luftdurchsatz durch Wahl einer entsprechend großen Filterfläche erzielt werden muß. Große Filter erfordern aber auch große und teure Zähler. Für die im folgenden beschriebene Apparatur wurde als Kompromiß zwischen den Forderungen nach möglichst hoher Empfindlichkeit und tragbaren Kosten ein Filterdurchmesser von 70 mm gewählt. Der Abscheidewirkungsgrad dieser Filter wurde - wie im folgenden gezeigt wird - eingehend untersucht, und zwar sowohl für Zerfallsprodukte in Form freier Ionen als auch für solche, welche an Aerosolteilchen gebunden sind.

Die beim Zerfall der Emanationen entstehenden Zerfallsprodukte — Isotope der Schwermetalle Polonium, Wismut und Blei — sind vorerst freie positiv geladene Ionen. Als solche bewegen sie sich entsprechend den Gesetzen der Gaskinetik mit relativ hoher mittlerer Geschwindigkeit. Durch Zusammenstöße mit den in der Luft schwebenden Aerosolteilchen lagern sie sich jedoch rasch an diese an, teils durch chemische Bindung, teils durch Adsorption. Die Halbwertszeit der Anlagerung an Aerosolteilchen beträgt nach JACOBI (1962) ungefähr I Minute. Daher wird in der Freibzw. Raumluft normalerweise der Großteil der Zerfallsprodukte an Aerosole angelagert sein und das Schicksal dieser Aerosole erleiden. Die Frage, welchen Abscheidewirkungsgrad die gewählten Filter für die verschiedenen Radionuklide in Abhängigkeit vom Aerosolgehalt der Luft haben, ist für die Funktion der Doppelfilterapparatur von entscheidender Bedeutung (während das a-Filter von aerosolhaltiger Luft durchströmt wird, muß das c-Filter die Zerfallsprodukte in Form freier Ionen oder Atome abfiltern, da der Aerosolgehalt im Inneren der Zerfallskammer praktisch Null ist). Sie wurde durch vier verschiedene Versuchsreihen geklärt.

Erste Versuchsanordnung: Raumluft mit normalem Aerosolgehalt wird durch eine Th 228-Lösung geleitet, aus der sie das laufend neu gebildete Thoron austreibt. Sie verliert dabei allerdings einen Teil ihres Aerosolgehaltes. Nun wird diese Luft solange in einem 200-Liter-Behälter aufbewahrt, bis das Thoron restlos in ThB (bzw. ThC) zerfallen ist, wobei sich diese Zerfallsprodukte an das noch vorhandene Aerosol anlagern werden. 150 Liter dieser Luft werden sodann durch einen langen

<sup>•</sup> Wir wählten die Type MF 100 der Firma Sartorius Membranfilterges. m. b. H., 34 Göttingen/Deutschland.

Filterhalter geleitet, in dem 5 Filter  $(F_1 \dots F_5)$  hintereinander im Abstand von 3 mm eingespannt sind<sup>7</sup>.

Zweite Versuchsanordnung: Der 200-Liter-Behälter wird wieder auf dieselbe Art mit ThB- und ThC-haltiger Luft gefüllt. Dann werden 150 Liter dieser Luft durch die voll einsatzfähige Doppelfilterapparatur (vergl. später) hindurchgetrieben. Die Luft passiert also das Eingangsfilter (wobei zur Sicherheit in dem Eingangsfilterhalter immer 2 Filter, nämlich  $F_a$  und  $F_b$ , eingespannt wurden), die Zerfallskammer und am Ende der Kammer  $F_c$ . Es ist also zwischen dem zweiten und dritten Filter, nämlich  $F_b$  und  $F_c$ , ein Zwischenraum mit einem Luftvolumen von 25,1 Liter.

Dritte Versuchsanordnung: Es wird wieder Raumluft durch das Th 228-Präparat getrieben. Diese thoronhaltige Luft wird aber diesmal mit Raumluft gemischt, ehe sie in den 200-Liter-Behälter gelangt. Dadurch erhalten wir Luft mit normalem Aerosolgehalt. Die Zerfallsprodukte ThB und ThC sind in diesem Falle sicher zur Gänze an das Aerosol gebunden. Von dieser Luft werden nun wieder 150 Liter innerhalb von 4 Minuten durch den langen Filterhalter geleitet, in dem wiederum 5 Filter  $(F_1 \ldots F_b)$  mit einem Zwischenraum von je 3 mm eingespannt sind.

Vierte Versuchsanordnung: Durch ein Th 228-Präparat wird Luft hindurchgesaugt, mit Freiluft vermischt und direkt der Doppelfilterapparatur (mit 20 Liter/Minute) zugeleitet. An den Eingangsfiltern  $F_a$  und  $F_b$  werden praktisch alle Zerfallsprodukte und Aerosole abgefiltert. In der Kammer entstehen aus dem Thoron die Tochtersubstanzen ThB und ThC (ThA zerfällt ja infolge seiner kurzen Halbwertszeit praktisch sofort), die aber in der Kammer — da ja kein Aerosol vorhanden ist — als freie Ionen in der Luft bleiben. Diese Luft durchströmt den diesmal am Ausgang der Zerfallskammer befestigten langen Filterhalter, in dem wieder 5 Filter hintereinander eingespannt sind ( $F_1 \ldots F_5$ ).

Die Ergebnisse dieser vier Versuchsreihen sind in Tab. 3 zusammengestellt. Dabei wurde die Aktivität des ersten Filters gleich eins gesetzt, so daß die Zahlen für die weiteren Filter Bruchteile der Aktivität des ersten Filters (die aber praktisch gleich der Gesamtaktivität ist) darstellen. Um die Aktivität auf dem letzten Filter noch zuverlässig messen zu können, mußte die Aktivität auf dem ersten Filter sehr groß sein (ca. 10<sup>6</sup> Impulse pro Sekunde). Da so hohe Impulsraten nicht mehr meßbar sind, erfolgten die Messungen des ersten Filters einige Halbwertszeiten später; alle Messungen wurden dann auf den Zeitpunkt der Beladung der Filter zurückgerechnet.

Die Tabelle zeigt, daß unter der ersten und dritten Versuchsbedingung der Hauptteil der Zerfallsprodukte mit einem außerordentlich guten Abscheidewirkungsgrad am ersten Filter abgeschieden wird. Auf den weiteren Filtern befindet sich dann jeweils der gleiche Bruchteil. Es wird sich dabei um als freie Ionen vorkommende

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup> Bei allen Versuchen wird jedes Filter auf einen Metallring aufgeklebt (dadurch vermindert sich der wirksame Durchmesser des Filters auf 60 mm). Dieser Metallring erlaubt mittels eines O-Ringes eine einwandfreie Abdichtung des Filters gegen die Filterhalterung, bzw. gegen etwaige weitere Filter. Wegen der auftretenden Druckdifferenz muß als Stütze hinter jedem Filter eine Lochplatte aus PVC angebracht werden.

		F1	Fa	- -	F.	Н
		ThB ThC	ThB ThC	ThB ThC	ThB ThC '	ThB ThC
annabrona ganabrona	Verhältnis B:C Verhältnis B:C	1 1 1:0,8 1 1 1:0,8	6,5.10-7 1,6.10-6 1:20 2,3.10-7 2,0.10-6 1:68,5	2,9.10-• 1,7.10-• 1:46 3,8.10-7 1,9.10-• 1:4	$5,5.10^{-6} 2,0.10^{-7}$ $1:3$ $2,0.10^{-7} 5,1.10^{-7}$ $1:2$	7.10 <sup>-6</sup> 1,7.10 <sup>-7</sup> 1:2
		Ч	Fb	, Æ		
Z. Versuchs gnunbrons	Verhältnis B:C Verhältnis B:C	1 1 1:0,8 1 1 1:0,8	2,5.10-7 2.10-5 1:64 1,4.10-7 3,8.10-5 1:220	5.10-• 3,7.10-• 1:0,6 1,4.10-• 6,8.10-• 1:0,4		
		F1	Fa.	<b>5</b> 1 1	ра <mark>л</mark> а Гац ,	<b>я</b> Н
3. Versucha ganabroas	Verhältnis B:C Verhältnis B:C	1 1 1:0,7 1 1 1:0,7	1,4.10-• 3,3.10-5 1:17 1,4.10-• 3,2.10-5 1:16	3,7.10 <sup>-7</sup> 1,6.10 <sup>-6</sup> 1:3 3,5.10 <sup>-7</sup> 1.10 <sup>-6</sup>	1.10 <sup>-7</sup> 2,1.10 <sup>-7</sup> 1:1,5 1,4.10 <sup>-7</sup> 3.10 <sup>-7</sup>	$\begin{array}{c} 6,7.10^{-7} 5,7.10^{-7} \\ 1 & 0,6 \\ 5,10^{-7} & 6,10^{-7} \\ 1 & 0,8 \end{array}$
-suordnung	Verhältnis B:C Verhältnis B:C	1 1 1:0,29 1 1 . 1:0,29	4,6.10-4 8.10-4 1:0,5 5,4.10-4 7,5.10-4 1:0,4	5.10-4 5.10-4 1:0,3 4,9.10-4 5,6.10-4 1:0,33	3,5.10-4 3,6.10-4 1:0,3 3.10-4 4.10-4 1:0,3	5,4.10-4 5,6.10-4 1:0,3 4,6.10-4 5,5.10-4 1:0,35

Zerfallsprodukte handeln, die nur durch chemische Affinität, nicht aber mechanisch abgeschieden werden. Ist zwischen dem 2. und 3. Filter wie in der 2. Versuchsanordnung (die einer Messung mit der Zerfallskammer entspricht) ein größerer Luftraum, so gelingt es scheinbar einigen Zerfallsprodukten, trotz Aerosolarmut in der Kammer sich an Aerosole zu binden, wodurch am dritten Filter wieder ein etwas größerer Bruchteil zur Abscheidung gelangt. Dieser Bruchteil der Zerfallsprodukte (rund  $5.10^{-6}$ ), der durch die Eingangsfilter gelangt und sich am Filter  $F_{\rm c}$  ablagert, könnte die Radon- bzw. Thoronmessung verfälschen. Unter der Annahme, daß auch die Radonzerfallsprodukte denselben Abscheidewirkungsgrad haben, kann man berechnen, daß der Fehler bei normalen Meßbedingungen für die Radon- sowie Thoronmessungen weit unter 1% liegt.

Aus den Ergebnissen der vierten Versuchsreihe sieht man, daß selbst bei aerosolfreier Luft (wie sie in der Zerfallskammer vorhanden ist) die Zerfallsprodukte bereits durch das erste Filter sehr gut abgefiltert werden. Der Verlust an Zerfallsprodukten, die durch das Filter  $F_c$  durchgehen, ist vernachlässigbar klein und geht außerdem in die Eichung (vergl. später) ein.

Dieser hohe Abscheidewirkungsgrad der Membranfilter läßt sich durch ihre mechanische Siebwirkung (mittl. Porendurchmesser = 0,6  $\mu$ m nach dem Quecksilberintrusionsverfahren) keineswegs erklären. Wahrscheinlich sind dafür elektrostatische Kräfte (die Zerfallsprodukte sind bei ihrer Entstehung z. T. positiv geladen) und chemische Affinitäten maßgebend, was auch die unterschiedliche Abscheidung für das Pb-Isotop ThB gegenüber dem Wismuthisotop ThC erklären könnte (vergl. Tab. 3, zweites und drittes Filter!).

### 3.2. Zerfallskammer und Eichung

Bei der Wahl der Größe und Form der Kammer wurde versucht, durch geeignete Dimensionierung eine höchstmögliche Nachweisempfindlichkeit für Thoron<sup>8</sup> zu erreichen. Dabei müssen wir zwischen 2 Gruppen von Anwendungen unterscheiden:

1. Die Thoronkonzentration der zu untersuchenden Luft ist unabhängig von  $\Phi$ , was bei der Messung von Frei- oder Raumluft gilt. In diesem Fall ist ein großes  $\Phi$ anzustreben, da ja dadurch eine größere Thoronmenge zur Messung gelangt. Die Maximalgröße von  $\Phi$  ist durch die Filtergröße begrenzt (in unserem Fall rund 40 l/min).

2. Die Thoronkonzentration der zu untersuchenden Luft ist verkehrt proportional zu  $\Phi$ . Das gilt für folgende Fälle:

a) bei der Bestimmung des Ra 224- (bzw. auch Th 228-)Gehaltes von Flüssigkeiten (z. B. können mit der hier beschriebenen Apparatur in Ra 226-Eich-

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup> Wegen der langen Halbwertszeit des Radon nimmt die Nachweisempfindlichkeit mit wachsender Kammergröße (und damit bei gleichem  $\Phi$  mit wachsendem  $\vartheta$ ) praktisch linear zu. Für hohe Empfindlichkeit müßten deshalb sehr größe Kammern gebaut werden, die dann für Thoron ungeeignet wären. Für Radon gibt es aber andere, sehr empfindliche Nachweisverfahren.

lösungen noch minimalste Verunreinigungen an Th 228 festgestellt werden!).

- In diesem Fall braucht  $\Phi$  nur gerade so groß zu sein, daß das in der untersuchten
- Flüssigkeit stets neu erzeugte Thoron vollständig ausgetrieben wird.
- b) bei der Messung der Thoronkonzentration der Ausatmungsluft zur Feststellung eines Körperdepots an Th 228 (bzw. Ra 224). In diesem Fall wird  $\Phi$  durch das *Atemminutenvolumen* festgelegt, das beim Menschen in Ruhelage rd. 7-10 l/min beträgt.

Die Wahl der Kammergröße hängt aber außer von  $\Phi$  noch von  $\vartheta$  ab. Theoretisch ist die Nachweisempfindlichkeit umso größer, je größer  $\vartheta$  ist, weil dann ein immer größerer Anteil des Thoron in der Kammer zerfällt, bis schließlich bei einer Verweilzeit  $\vartheta$  gleich einigen Halbwertszeiten des Thoronzerfalls die maximale Nachweisempfindlichkeit erreicht wäre. Praktisch wird jedoch die Zunahme der Nachweisempfindlichkeit schon viel früher durch den steigenden Wandeffekt, also durch die Abnahme des schon früher definierten Nutzeffektes kompensiert.

Umfangreiche Versuche zur Messung des in der Eichformel vorkommenden und damit die Empfindlichkeit beeinflussenden Faktors  $W_{Rn}$  bzw.  $W_{Tn}$  (Nutzeffekt) zeigen nämlich folgendes:

- 1. Der Nutzeffekt ist unabhängig vom verwendeten Kammermaterial.
- 2. Der Nutzettekt ist bei konstantem Kammervolumen stark abhängig von der Durchflußgeschwindigkeit, d. h. also von der Verweilzeit  $\vartheta$ . (Deshalb muß auch die Eichung einer gegebenen Kammer für verschiedene  $\Phi$  erfolgen!).
- 3. Der Nutzeffekt ist bei den hier verwendeten zylindrischen Röhren umso geringer, je kleiner das Verhältnis Länge zu Innendurchmesser gewählt wird, weil dadurch das Strömungsprofil am Rande stärker abnimmt und somit die Zerfallsprodukte leichter Gelegenheit haben, sich an die Wände abzulagern.
- 4. Der Nutze//ekt wird umso kleiner, je größer bei gleichem  $\Phi$  das Volumen, bzw. je größer damit die Verweilzeit ist.
- 5. Der Nutzeffekt ist für Radon und Thoron verschieden, so daß für beide Emanationen verschiedene Eichfaktoren  $W_{Rn}$  und  $W_{Tn}$  gelten.

"Diese Untersuchungen zeigten, daß für  $\Phi = 40$  l/min das günstigste Kammervolumen zwischen 20 und 50 l liegt. Es wurde deshalb für die Messung der Frei- und Raumluft ein Kammervolumen von rd. 25 l gewählt, mit dem die geforderte Empfindlichkeit erreicht werden konnte. (Zur Messung der Ausatemluft wurde wegen des kleineren  $\Phi$  eine Kammer mit einem Volumen von 18,7 l gebaut).

Die Zerfallskammer besteht aus einem PVC-Rohr mit einem Innendurchmesser von 154 mm und einer Länge von 1315 mm. Links und rechts wurden aus Aluminium gedrehte Flansche mit Araldit aufgeklebt. Diese Flansche dienen zur Befestigung der Filterhalter und sind innen konisch ausgedreht, um eine günstige Strömung der Luft zu gewährleisten. In der Mitte der Kammer befindet sich ein Ansatzstutzen, auf den ein Unterdruckmanometer aufgeschraubt wird. Die Filterhalter werden unter Zwischenlage eines O-Ringes — an beiden Flanschen der Kammer aufgeschraubt und gestatten ein leichtes Auswechseln der Filter und ihren bequemen Transport in das Laboratorium. Die Filter selbst werden — wie schon erwähnt in die Halter zusammen mit einer 0-Ring-Dichtung und einer Stützplatte eingeschraubt. Da schon geringe Spuren von eingeströmten Zerfallsprodukten das Meßergebnis erheblich verfälschen, mußte auf die Dichtheit der Zerfallskammer größter Wert gelegt werden.

Die hier beschriebene 25,1-Liter-Kammer wurde für Radon und Thoron mit Hilfe von Eichlösungen geeicht, das heißt, der Nutzeffekt  $W_{Rn}$  bzw.  $W_{Tn}$  wurde für verscheidene  $\Phi$  (da in der Praxis nicht immer das maximale  $\Phi$ -verwendet wird) gemessen. Zur Eichung braucht man Luft mit bekannter Emanationskonzentration.<sup>9</sup> Diese crhält man, indem man einen Luftstrom mit bekannter Geschwindigkeit (etwa 2 l/min) durch eine Ra 226- bzw. Th,228-Eichlösung durchperlen läßt. Durch Zumischung von Raumluft kann sodann jeder beliebige Luftdurchsatz  $\Phi$  in der



Abb. 3: Nutzeffekt  $W_{Rn}$  (+) und  $W_{Tn}$  ( $\Delta$ ) für die 25,1 l-Kammer in Abhängigkeit von dem Luftdurchsatz  $\Phi$ .

Zerfallskammer hergestellt werden. Bei der Berechnung der Emanationskonzentration in der Luft aus der Aktivität des Eichpräparates muß weiters der Zerfall der Emanation zwischen Eichpräparat und dem Erreichen des a-Filters berücksichtigt werden. Die Ergebnisse dieser Messung gibt Abb. 3 wieder. Es besteht, wie schon früher erwähnt, ein erheblicher Unterschied zwischen den beiden Emanationen. Bei den Radonzerfallsprodukten geht für alle  $\Phi$  ein wesentlich kleinerer Bruchteil

<sup>•</sup> Eine sehr elegante Eichung — ohne Eichpräparat und der damit verbundenen Problematik der vollständigen Entemanierung — mit einer erweiterten Doppelfilterapparatur beschreiben HÖHLE und WETZSTEIN (1968).

der Radionuklide an die Wand als bei den Thoronzerfallsprodukten. Das ist erklärlich aus der Tatsache, daß Thoron eine viel kürzere Halbwertszeit hat und infolgedessen ein größerer Teil des Thoron schon am Anfang der Kammer zerfällt und somit im Mittel die Zerfallsprodukte einen längeren Weg bis zum Filter zurückzulegen haben, was die Wahrscheinlichkeit einer Ablagerung an die Wand erhöht. Vor Beginn der eigentlichen Messung mußten die so geeichten Kammern mit Hilfe von abgelagerter Preßluft, die sicher kein Radon und Thoron enthält, auf eine etwaige Verseuchung überprüft werden. Einmal kann das Baumaterial der Zerfallskammer Spuren der langlebigen Mutterelemente der Emanationen enthalten, und andererseits können im Zuge der Eichung aus der Eichlösung (trotz Vorlageflasche und des hohen Abscheidewirkungsgrades der Filter) kleinste Mengen der Muttersubstanzen in die Kammer gelangen. Diese Muttersubstanzen können während des Betriebes der Kammer Radon und Thoron bilden und damit das Meßergebnis verfälschen.

### 3. 3. Zähleinrichtungen

Wie bereits erwähnt, kommt für die Auswertung der Ein- und Ausgangsfilter nur die Messung der  $\alpha$ -Strahlen in Frage, da  $\alpha$ -Zähler sehr viel kleinere Leereffekte als  $\beta$ - oder  $\gamma$ -Zähler haben. Kleine Leereffekte sind aber unerläßlich zur Erreichung einer hohen Empfindlichkeit.

Wegen der geringeren Baukosten wurden zuerst vier  $2\pi$ -Proportional-Durchflußzähler mit einer kreisrunden effektiven Zählfläche von 32 cm<sup>2</sup> gebaut. Unter Verwendung eines Zählgasgemisches von 90% Argon und 10% Methan erreichten diese Zähler für die in der Doppelfilterapparatur beladenen Filter einen Wirkungsgrad<sup>10</sup> von  $E_z = 0,394 \pm 0,01$ . Obwohl als Wandmaterial für die Zählrohre ausgesuchter, mindestens 30 Jahre alter Stahl und auch ein eigens entwickelter Vorverstärker mit äußerst geringem Störpegel verwendet wurde, konnte nur ein Leereffekt<sup>11</sup> von 0,055 cpm pro cm<sup>2</sup> effektiver Zählfläche erreicht werden. Diese Zähler wurden zur Messung der Eingangsfilter  $F_a$  verwendet, da deren Aktivitäten selbst bei Freiluftmessungen immer genügend hoch waren. Zur Messung des Ausgangsfilters  $F_c$  mußten

<sup>&</sup>lt;sup>10</sup> Zur Bestimmung des Wirkungsgrades wurde die  $\alpha$ -Aktivität eines in der Doppelfilterkammer mit ThB beladenen Filters im  $\alpha$ -Zähler (nach Eintreten des laufenden Gleichgewichtes zwischen ThB und ThC) gemessen und dann das Filter in einem Proberöhrchen in Aceton aufgelöst. Von dem so erhaltenen Präparat wurde nun die  $\gamma$ -Aktivität des ThC—ThC'' im Bohrloch eines  $\gamma$ -Szintillationszählers bestimmt. Mit Hilfe eines Th 228-Eichpräparates konnte dadurch die ThC-Aktivität des Filters und damit unter Berücksichtigung des Faktors für das laufende Gleichgewicht auch die gesamte im Filter enthaltene ThB-Menge errechnet werden. Der zeitliche Abstand zwischen den Messungen des Filters im  $\alpha$ -Zähler und im  $\gamma$ -Szintillationszähler muß durch Berechnung des ThB-Zerfalls berücksichtigt werden.

<sup>&</sup>lt;sup>11</sup> Der Leereffekt steigt mit der Betriebsspannung der Zähler stark an, er ist deshalb im hohen Maße von der Wahl des Arbeitspunktes abhängig. Wegen der Selbstabsorption der a-Strahlung im Filter und des Randeffektes mußte aber der Arbeitspunkt viel höher gelegt werden als es beispielsweise bei der Verwendung eines Eichpräparates oder anderer Präparate in sehr dünner Schichtdicke notwendig ist. Am Anfang des Plateaus für Präparate mit sehr dünner Schichtdicke ergaben auch diese Zähler einen Leereffekt von nur 0,009 cpm pro cm<sup>2</sup> effektiver Zählfläche.

aber noch zusätzlich zwei a-Szintillationszähler gebaut werden, da bei solchen Zählern noch niedrigere Leereffekte erzielt werden können. Bei diesen Zählern ist für den Leereffekt nur die α-Eigenradioaktivität des Szintillatormaterials und der Oberfläche des verwendeten Präparatträgers verantwortlich, während beim Proportionalzähler die Eigenradioaktivität der gesamten mit dem Zählraum in Verbindung stehenden Oberflächen wirksam ist. Die Szintillationszähler wurden so gebaut, daß sie zur Messung der Filter wahlweise mit einer Szintillatorscheibe<sup>12</sup> (Alpha particle detector NE 840 C der Firma Nuclear Enterprises (GB) LTD) oder mit einer Szintillationsfolie<sup>13</sup> (hergestellt nach den Angaben von HALLDEN und HARLEY (1960)) verwendet werden können. Als Fotovervielfacher wurde die Type XP 1031 der Firma Philips mit einem wirksamen Kathodendurchmesser von 63,5 mm benützt. Zur Erreichung eines möglichst niedrigen Leereffektes wurde nach PAGANO, DAME-RELL und CHERRY (1962) die Spannung zwischen den Dynoden, V<sub>d</sub>, und die Spannung zwischen letzter Dynode und Kathode, V<sub>c</sub>, in einem Verhältnis V<sub>c</sub>/V<sub>d</sub> = 1,5 eingestellt. Bei Verwendung der Szintillatorscheibe kann die Meßsonde wechselweise mit einem Schraubdeckel oder mit einem Probenwechsler (vergl. unten) verwendet werden, wobei in diesem Falle zwischen dem Filter und dem Szintillator zirka 2 mm Abstand ist. Die effektive Zählfläche beträgt 42 cm². Im Arbeitspunkt hat diese Anordnung für die in der Doppelfilterapparatur beladenen Filter einen Zählerwirkungsgrad von  $E_s = 0.332 \pm 0.005$ . Dieser Wert ist etwas niedriger als der bei den Proportionalzählern gefundene, was sich durch den Verlust der Lichtquanten in dem Lichtleiter zwischen ZnS-Schicht-und Fotovervielfacher erklärt. Die Messung des Leereffektes ergab den für die geforderte Empfindlichkeit befriedigenden Wert von 0,007 cpm pro cm² Zählfläche. Eine Steigerung des Zählerwirkungsgrades auf  $E_z = 0.430 \pm 0.005$  wird erreicht, wenn man die oben beschriebene Szintillationsfolie in direktem Kontakt mit dem Filter verwendet. Eine weitere Möglichkeit zur Verbesserung des Zählerwirkungsgrades besteht darin, das Filter auf beiden Seiten mit einer Szintillationsfölie zu bedecken<sup>14</sup> und zwei Fotovervielfacher zu verwenden; was den Gesamtwirkungsgrad auf  $0,60 \pm 0,01$  erhöht. Gegenüber der Messung der Filter mit Szintillatorscheibe kann man dadurch die Empfindlichkeit auf nahezu das Doppelte steigern! Allerdings muß man beachten, daß bei Verwendung von zwei Szintillationszählern der Leereffekt auch um das Doppelte ansteigen wird. Diese zweite Methode verlangt in der Praxis aber einen erheblich größeren Aufwand, wobei zusätzlich noch die Filter wesentlich umständlicher zu wechseln sind. Die später beschriebenen Freiluftmessungen in Innsbruck wurden alle mit den Szintillatorscheiben durchgeführt.

 $<sup>^{12}</sup>$  Es handelt sich dabei um eine zylindrische Scheibe aus Perspex (6,3 mm Dicke und 76,2 mm Durchmesser), auf die silberaktiviertes Zinksulfidpulver aufgebracht ist.

<sup>&</sup>lt;sup>13</sup> Dabei handelt es sich um eine Folie aus Mylar (Dicke 0,11 mm), die mit einer Schicht silberaktivierten Zinksulfidpulvers belegt ist.

<sup>&</sup>lt;sup>14</sup> Die Dicke des Filters ist kleiner als die mittlere Reichweite der a-Strahlung; die Zählrate auf der Rückseite des beladenen Filters beträgt daher noch 40% der Vorderseite.

Proportional- wie auch Szintillationszähler wurden zur Messung an ein transistorisiertes 4-Kanal-Strahlungsmeßgerät der Firma Philips (bestehend aus vier Eingangsverstärkern mit Einkanaldiskriminatoren, vier Zählgeräten, einem Zeitgeber, einem Steuergerät und einer elektrischen Schreibmaschine zur automatischen Datenausgabe sowie einem ultrastabilen Hochspannungsgerät) angeschlossen. Durch die automatische Zählung und Ausschreibung wurde eine kontinuierliche Messung der Proben über die notwendigen langen Zeiträume (bis zu 3 Tage) gewährleistet.

Bei der praktischen Durchführung der Messungen müssen die Proben in gewissen Zeitabständen gewechselt werden. Dies ist bereits zur fortlaufenden Kontrolle des Leereffektes erforderlich. Bei der Messung kleinerer Aktivitäten muß streng darauf geachtet werden, daß die zu messenden Filterscheiben nicht durch Raumluft verseucht werden können. Daher ist es wichtig, einen Probenwechsler zu verwenden, der es gestattet, die Filter zu wechseln, ohne daß dabei die Filter mit Raumluft in Berührung kommen. Es wurden daher drei Probenwechsler für jeweils vier Filter gebaut. Beim Anschluß eines Proportionalzählers an den Probenwechsler steht der Zählergasraum mit dem Probenwechslergasraum in Verbindung, wobei das Zählgas durch den Zähler eingeleitet und durch eine in die Deckplatte des Probenwechslers eingelassene Schlaucholive abgeleitet wird. Verwendet man die Probenwechsler in Verbindung mit einem Szintillationszähler, kann der Gasraum des Probenwechslers mit abgelagerter Preßluft gespült werden. Dadurch wird erreicht, daß die Raumluft, die beim Wechseln der Filter in den Probenwechsler gelangen konnte, sofort wieder herausgespült wird und keine Verseuchung durch die in der Raumluft vorhandenen radioaktiven Nuklide stattfinden kann.

## 3.4. Nachweisempfindlichkeit für Radon und Thoron

Die Empfindlichkeit und der Meßfehler für Radon und Thoron werden bei der Doppelfilterapparatur von den Größen, die in den Eichformeln vorkommen, beeinflußt. Die geringsten nachweisbaren Konzentrationen für Radon und Thoron lassen sich daraus wie folgt berechnen.

1: Messung der Raum- und Freiluft:

Bei einem Kammervolumen von 25,1 l, einem Luftdurchsatz von 40 l/min und einer Sammelzeit d = 15 Stunden können mit einem mittleren relativen Fehler von 25% gemessen werden:

eine Radonkonzentration von 0,145 pCi/l eine Thoronkonzentration von 0,085 pCi/l

2. Messung der Ausatemluft von Personen:

Bei einem Kammervolumen von 18,7 l, einem Luftdurchsatz von 10 l/min und einer Sammelzeit von d = 3 Stunden können mit einem mittleren relativen Fehler von 25% gemessen werden:

eine Radonkonzentration von 0,23 pCi/l eine Thoronkonzentration von 0,56 pCi/l

#### 4. Praktische Anwendung der Apparatur

Um die Doppelfilterapparatur bei sehr kleinen Emanationskonzentrationen zu testen, wurden im Winter 1967/68 in Innsbruck einige Messungen der Freiluft mit Hilfe der 25,1 l-Kammer vorgenommen und damit erstmals der Thorongehalt im Raume Innsbruck gemessen. Während der ganzen Meßperiode (vom 20. Dezember bis zum 26. Jänner) war der Boden stets mit Schnee bedeckt, wodurch die Exhalation von Radon und Thoron aus dem Boden behindert war. Die Meßstelle befand sich im Garten des Institutes für Physiologie, auf der unseren Versuchsräumen entgegengesetzten Seite, so daß aus unseren Räumen eventuell austretende Emanationen keinen Einfluß auf die Messungen nehmen konnten. Das Filter  $F_a$  befand sich in 1 m Höhe über dem Erdboden und in 2 m Entfernung vom Institutsgebäude. Es wurden insgesamt 9 Messungen an 9 verschiedenen Tagen gemacht, wobei entweder den Tag über (9 Stunden) oder während der Nacht (15 Stunden) die Luft durch die Zerfallskammer gesaugt wurde.

Tab. 4: Der Radon- und Thorongehalt in pCi/l sowie das Verhältnis RaB/Rn und ThB/Tn der Freiluft im Institutsgarten des Physiologischen Institutes in Innsbruck.

Datum	Meß- be- ginn	Radon	$\frac{\mathbf{RaB}}{\mathbf{Rn}}$	Thoron	$rac{\mathrm{Th}\mathbf{B}}{\mathrm{Tn}}$	Wetter	Neu- schnee	Alt- schnee
20. 12. 67	850	0,17 ± 0,044	0,87	0,29 ± 0.065	0,0037	heiter	10 cm	
21. 12. 67	1745	0,20 ± 0,050	3,00	$0,89~\pm~0,13$	0,0027	bewölkt		10 cm
22. 12. 67	1743	0,155 ± 0,042	2,99	1,28 $\pm$ 0,18	0,0023	Schneefall	10 cm	20 cm
15. 1.68	18%	0,106 ± 0,034	1,87	$0,53~\pm~0,085$	0,0039	föhnig		<b>4</b> 0 cm
16. 1.68	1810	$0,22 \pm 0,053$	2,12	$1,37 \pm 0,19$	0,0014	heiter		30 cm
23. 1.68	850	$0,212 \pm 0,051$	3,75	$1,57 \pm 0,22$	0,00076	heiter		25 cm
23. 1.68	1810	$\textbf{0,623}~\pm~\textbf{0,11}$	1.73	$1,27 \pm 0.18$	0,0016	bewölkt		20 em
25. 1.68	9%	$0,136 \pm 0.038$	0,53	0,77 $\pm$ 0,12	0,00062	Schneefall	10 cm	15 cm
26. 1.68	1020	0,099 $\pm$ 0,031	0,20	0,80 $\pm$ 0,13	, 0,00012	föhnig	20 cm	25 cm

Die Ergebnisse (samt ihren Standardabweichungen) sind in Tab. 4 zusammengestellt. Es zeigt sich, daß das ThB stets in großem Unterschuß zu Thoron vorkommt, wogegen RaB in sehr verschiedenen Verhältnissen zum Radon steht. Bei einigen Messungen ergab sich sogar ein Überschuß an RaB gegenüber dem Radon. Das läßt sich nur damit erklären, daß an diesen Tagen atmosphärische Mechanismen zur Wirkung kamen, bei denen Radon einen schnelleren Abtransport erfährt als seine Zerfallsprodukte. Die gefundenen Radon- und Thorongehalte der Freiluft in Innsbruck sind gegenüber dem allgemeinen Durchschnittswert für die Freiluft über dem Festland leicht erhöht, doch ist die Zahl der Messungen zu gering, um daraus weitergehende Schlüsse zu ziehen. Das Ergebnis der Radonmessungen steht aber in guter Übereinstimmung mit früher erfolgten Messungen in Innsbruck (vgl. SCHWEIDLER (1921), ZLATAROVIC (1920), MACEK und ILLING (1935) und PRIEBSCH et. al. (1937)).

Im Sommer 1967 und 1968 wurden als besonders interessante Anwendung der Apparatur Emanationsmessungen im Raume von Badgastein vorgenommen. Es konnte dort Thoron noch bei einer mehr als 1000mal höheren Radonkonzentration nachgewiesen werden. Diese Meßergebnisse finden sich z. T. bereits bei MÄRK (1968); ausführlicher wird darüber in Kürze an anderer Stelle publiziert werden.

Diese Arbeit wurde am Isotopenlabor des Institutes für Physiologie und Balneologie unter Leitung von Univ.-Doz. Dr. E. POHL durchgeführt. Herrn Univ.-Prof. Dr. F. SCHEMINZKY, dem diese Arbeit zu seinem 70. Geburtstag gewidmet ist, habe ich für stete Förderung und Bereitstellung der erheblichen finanziellen Mittel sehr zu danken, ebenso Herrn Univ.-Prof. Dr. R. STEINMAURER für Rat und Betreuung.

Zu Dank verpflichtet bin ich auch dem ÖSTERREICHISCHEN FORSCHUNGSRAT, der die für alle Messungen benützte Vierkanal-Strahlungsmeßanlage zur Verfügung stellte.

#### Literaturverzeichnis

- FONTAN, J., D. BLANC, A. BOUVILLE (1962): Emploi D'Un Système De Coincidences Dans Le Dosage Sélectif Du Radon Et Du Thoron Atmosphèriques. Le Journ. De Phys. et le Radium. Tome 23, 333.
- HALLDEN and HARLEY (1960): An Improved Alpha-Counting Technique. Analytical Chemistry 32, 1861.
- HÖHLE, R., E. WETZSTEIN (1968): Eine Eichmethode für Thoronmeßgeräte. Atomkernenergie (ATKE) 13-47 (285-287).
- ISRAEL, H., G. W. ISRAEL (1965): Measurements of the thoron content of the atmosphere and their application in meteorology. Forschungsstelle für Geophys. und Meteorol. Techn. Hochsch. Aachen.
- JACOBI, W. (1962): Die natürliche Radioaktivität der Atmosphäre und ihre Bedeutung für die Strahlenbelastung des Menschen. Hahn-Meitner-Inst., Berlin.
- JACOBI, W. (1964): A Double-Filter Device to Measure Radon and Thoron in the Breath. Assessm. of Radioact. in Man. Vol. I. IAEA, Vienna.
- MACEK, O., W. ILLING (1935): Messung des Emanationsgehaltes der Luft nach der Spitzenmethode. Gerlands Beitr. zu Geophys., 43, 388-418.
- MACHE, H., T. RIMMER (1906): Über die in der Atmosphäre enthaltenen Zerfallsprodukte des Radium. Phys. Z., 7, 617-823.
- MÄRK, D. T. (1968): Eine Meßanlage hoher Empfindlichkeit zum Nachweis von Thoron, Radon und deren Zerfallsprodukten in der Luft. Diss. Univ. Innsbruck.
- PAGANO, R., C. J. S. DAMERELL, R. D. CHERRY (1962): Effect of Photocathode-to-First Dynode Voltage on Photomultiplier Noise Pulses. Rev. Sci. Instr. 33, 955-956.
- POHL, E. (1962): Die Strahlenbelastung bei der Inhalation von Radiumemanationen. Strahlenth. 119, 77-96.
- POHL, E. (1965): Biophysikalische Untersuchungen über die Inkorporation der natürlichen radioaktiven Emanationen und deren Zerfallsprodukte. Sitzungs-Ber. Öst. Akad. Wiss. II, 174, 309, 442.
- POHL, E. (1966): Second International Biophysics Congress Vienna, paper 616.
- POHL, E., J. POHL-RULING (1967): The Radiation Dose Received by Inhalation of Air Containing Rn 222, Rn 220, Pb 212 (ThB) and Their Decay Products. An. Acad. brasil. Cienc. 39, 393-404.

- POHL, E., J. POHL-RÜLING (1968): Die Strahlenbelastung bei der Inhalation von Radon, Thoron und deren Zerfallsprodukten. Strahlentherapie, 136, 738-749.
- PRIEBSCH, J., G. RADINGER, P. L. DYMEK (1937): Untersuchungen über den Radium-Emanations-Gehalt der Freiluft in Innsbruck und auf dem Hafelekar (2300 m). Gerlands Beitr. Geophys., 50, 55-77.
- SCHWEIDLER, E. (1921): Zusammenfassender Bericht über luftelektrische Beobachtungen in Seeham (Salzburg) und in Innsbruck. Jahrb. Radioakt. und Elektr., 18, 1–21.
- ZLATAROVIC, R. (1920): Messungen des Radium-Emanations-Gehaltes in der Luft von Innsbruck, Sitzungs.-Ber, Öst. Akad, Wiss, II a 129, 59-66.

Anschrift des Verf.: Dr. Tilmann D. MÄRK, Institut für Atomphysik, Müllerstraße 23/I, A-6020 Innsbruck.

.

# **ZOBODAT - www.zobodat.at**

Zoologisch-Botanische Datenbank/Zoological-Botanical Database

Digitale Literatur/Digital Literature

Zeitschrift/Journal: <u>Berichte des naturwissenschaftlichen-medizinischen</u> <u>Verein Innsbruck</u>

Jahr/Year: 1969

Band/Volume: 57

Autor(en)/Author(s): Märk Tilmann D.

Artikel/Article: Eine Apparatur hoher Empfindlichkeit zur Messung der natürlicher Radioaktivität der Atmosphäre. 71-93