KfK 3805 : 3 September 1985

Bestimmung der Strahlenbelastung der Bevölkerung durch Radon und dessen kurzlebige Zerfallsprodukte in Wohnhäusern und im Freien

M. Urban, A. Wicke, H. Kiefer Hauptabteilung Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe



84.549

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE HAUPTABTEILUNG SICHERHEIT

KfK 3805

Bestimmung der Strahlenbelastung der Bevölkerung durch Radon und dessen kurzlebige Zerfallsprodukte in Wohnhäusern und im Freien

M. Urban, A. Wicke, H. Kiefer

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

> Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH ISSN 0303-4003

Das Forschungsvorhaben wurde im Auftrag des Bundesministers des Innern unter dem Arbeitstitel "Messung der Raumluftkonzentration von Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten in Wohnräumen; Abschätzung der Lungendosis der Bewohner" (St.Sch. 697a) durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt liegt bei den Autoren.

Zusammenfassung

Die Inhalation von Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten in Wohnhäusern führt zu einer der bedeutendsten Strahlenexpositionen der Bevölkerung. Im Auftrag des Bundesministers des Innern wurden bundesweite Radonerhebungsmessungen durchgeführt. Dabei wurden bei mehr als 20 000 Einzelmessungen in ca. 6 000 Wohnungen als Medianwert der Radonkonzentration 40 Bqm⁻³ und im Freien 14 Bqm⁻³ ermittelt.

Im Bericht werden die verwendeten Meßverfahren und die erzielten Ergebnisse ausführlich dargestellt.

ESTIMATION OF THE RADIATION EXPOSURE OF THE GENERAL PUBLIC DUE TO RADON AND ITS SHORT LIVED DECAY PRODUCTS IN GERMAN HOUSES AND IN OUTDOOR AIR

Abstract

One of the most important sources of radiation exposure for the general public is the inhalation of radon and its short lived decay products in houses. On the behalf of the Federal Minster of Interior a nation wide radon survey was carried out in 6 000 German houses. As result of more than 20 000 single measurements median values for indoor and outdoor radon concentration of 40 Bqm⁻³ and 14 Bqm⁻³ were found. In this report measurement techniques as well as the results of the measurements are presented in detail.

Vorwort

Das Forschungsvorhaben wurde im Auftrag des Bundesministers des Innern in den Jahren 1978-1984 vom Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführt. Die in diesem Bericht in Kapital 5 und 6 beschriebenen Radonerhebungsmessungen erfolgten in enger Zusammenarbeit mit dem Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes Neuherberg. So lagen insbesondere die statistischen Auswertungen in Kapitel 6.1 bis 6.2.3.8 im Rahmen eines parallel laufenden Forschungsvorhabens in der Hand des Bundesgesundheitsamtes in Neuherberg.

In den Jahren 1982 und 1984 wurden von der europäischen Gemeinschaft Vergleichskalibrierungen für Meßgeräte zur Bestimmung der Konzentration von Radon und dessen kurzlebigen Zerfallsprodukten in Luft organisiert. Die Vergleichskalibrierungen 1984 waren zugleich Teil eines umfangreichen Vergleichsprogramms der OECD. Hierzu benannte die OECD vier regionale Standardlabors: Für Europa das National Radiological Protection Board (NRPB), England, für Nordamerika das Environmental Measurement Laboratory (EML) des US Department of Energy, New York und das Denver Research Center (DMRC) des US Bureau of Mines (USBM), Denver, sowie für den Pazifik das Australien Radiation Laboratory (ARL), Melbourne. Die vier regionalen Labors haben untereinander drei Serien von Vergleichskalibrierungen durchgeführt. Im Verlaufe dieser Kalibrierungen mußten verschiedene Labors ihre Kalibrierfaktoren sowie die Vorgehensweise zu deren Bestimmung ändern. NRPB und ARL änderten dabei ihre Standards, die beiden amerikanischen Labors führten technische Änderungen an ihren Meßgeräten durch. Nach Änderung der Kalibrierfaktoren durch NRPB und ARL weichen die Messungen der einzelnen Labors um weniger als 6 % voneinander ab.

Die von KfK bei zwei dieser regionalen Standardlabors vor 1984 durchgeführten Vergleichskalibrierungen zeigen gute Übereinstimmung (vergl. Abb. 3.12). Nach Änderung des Standards durch NRPB aufgrund der Vergleichskalibrierung der vier regionalen Standardlabors untereinander um ca. 20 % weichen die Ergebnisse des KfK-Dosimeters bei der EG-Vergleichskalibrierung 1984, durchgeführt bei NRPB, ebenfalls um 20 % ab. Unter der Annahme, daß die NRPB-Kalibrierungen 1984 zuverlässig waren, und bei gleichzeitiger Nichtbeachtung der übereinstimmenden Kalibrierungen vor 1984 müßten die in dem Bericht angegebenen Radonkonzentrationen um ca. 20 % erhöht werden, um international vergleichbar zu sein.

Eine Anpassung des Kalibrierfaktors wurde aus folgenden Gründen nicht vorgenommen: 1. Die Messungen wurden vor Ende 1983 abgeschlossen. 2. Die 1984 ermittelte Abweichung von 20 % stützt sich auf nur eine Kalibrierung bei einem Institut, das 1984 seinen internen Standard geändert hat. 3. Das EML New York hat seinen Standard nicht geändert.

Inhaltsverzeichnis

| | | Seite |
|---------|---|-------|
| 1. | Einführung | 1 |
| 1.1 | Ausgangspunkt | 1 |
| 1.2 | Eigenschaften, Bedeutung und Quellen von Radon und seinen kurz- | |
| | lebigen Zerfallsprodukten | 1 |
| 1.3 | Physikalische Vorgänge in der Raumluft | 4 |
| 1.4 | Inhalation von Radon und dessen kurzlebigen Zerfallsprodukten | 8 |
| 1.5 | Ziel der Meßreihe | 9 |
| 2. | Meßverfahren: Momentane Konzentration von Radon- und Thoronzer- | |
| | fallsprodukten in Luft | 10 |
| 2.1 | Sammelvorgang | 10 |
| 2.1.1 | Filter | 10 |
| 2.1.2 | Sammelwirkungsgrad | 11 |
| 2.2 | Meßvorgang | 12 |
| 2.2.1 | Detektor | 12 |
| 2.2.1.1 | Gasversorgung | 13 |
| 2.2.1.2 | Detektorwirkungsgrad | 14 |
| 2.2.2 | Zähler | 16 |
| 2.3 | Auswertemethodik | 17 |
| 2.3.1 | Bestimmung der Teilchendichte in Luft | 17 |
| 2.3.2 | Potentielle <i>a</i> -Energiekonzentration | 20 |
| 2.3.3 | Fehlerbetrachtung | 21 |
| 3. | Meßverfahren: Integrierende Messung | 22 |
| 3.1 | Meßverfahren für Erhebungsmessungen | 22 |
| 3.2 | Nachweis von α-Teilchen durch elektrochemisches Ätzverfahren | 26 |
| 3.2.1 | Detektormaterialien | 26 |
| 3.2.2 | Elektrochemisches Ätzverfahren | 27 |
| 3.2.3 | Ätzapparatur zur Auswertung großer Serien | 28 |
| 3.3 | Konstruktion des Karlsruher passiven Radondosimeters | 33 |
| 3.3.1 | Detektorauswahl | 34 |
| 3.3.2 | Zählen von Kernspuren | 39 |

| 3.4 | Bestimmung der Radonexposition und der Meßunsicherheit | 42 |
|---------|---|-----|
| 3.4.1 | Radonexposition | 42 |
| 3.4.2 | Meßunsicherheit | 43 |
| 3.4.3 | Reproduzierbarkeit der Messung | 45 |
| 3.4.4 | Fadingverhalten der Kernspurdetektoren | 46 |
| | | |
| 4. | Ergebnisse einer kleinen Serie von Punktmessungen sowie einer | |
| | Pilotstudie mit passiven Dosimetern | 48 |
| | | |
| 5. | Durchführung der Radon-Erhebungsmessungen | 51 |
| 5.1 | Auswahlkriterien | 51 |
| 5.2 | Organisation der Erhebungsmessungen | 52 |
| 5.3 | Fragebogen | 56 |
| | | |
| 6. | Ergebnisse der Erhebungsmessungen | 57 |
| 6.1 | Ermittlung und Dokumentation der Ergebnisse | 57 |
| 6.2 | Ergebnisse der Messungen in Häusern | 58 |
| 6.2.1 | Statistische Beurteilung der Verteilung der Meßpunkte | 58 |
| 6.2.2 | Gesamtverteilung | 62 |
| 6.2.3 | Auswertung nach verschiedenen Gesichtspunkten | 64 |
| 6.2.3.1 | Regionale Verteilung | 64 |
| 6.2.3.2 | Haustyp, Bauweise und Art der Unterkellerung | 69 |
| 6.2.3.3 | Etage | 71 |
| 6.2.3.4 | Unterschiede zwischen einzelnen Räumen einer Wohnung | 72 |
| 6.2.3.5 | Alter | 73 |
| 6.2.3.6 | Heizung und Fenster | 73 |
| 6.2.3.7 | Baustoffe | 74 |
| 6.2.3.8 | Jahreszeitlicher Gang | 76 |
| 6.2.4 | Fachwerkhäuser | 77 |
| 6.2.5 | Spezielle Auswertungen | 82 |
| 6.2.5.1 | Freudenstädter Verwerfung | 82 |
| 6.2.5.2 | Durch früheren Bergbau beeinflußte Radonkonzentrationen | 0.0 |
| | im Freien und in Häusern | 82 |
| 6.3 | Radon im Freien gemessen in Klimastationen des Deutschen | |
| | Wetterdienstes | 89 |
| 6.3.1 | Klimahauptstationen | 90 |
| 6.3.2 | Ergebnisse aus einzelnen Gebieten mit dichterem Meßnetz | 92 |

|--|

| 6.4 | Einfluß des Radiumgehalts des Erdbodens auf die Radon- | |
|---------|--|------|
| | konzentration im Freien und in Häusern | 99 |
| 7. | Exposition und Dosisabschätzung | 100 |
| 7.1 | Gleichgewichtsfaktor | 101 |
| 7.2 | Relative Aufenthaltsdauer in Häusern und im Freien | 103 |
| 7.3 | Dosisfaktor und Abschätzung der Dosis | 104 |
| 7.4 | Risikobetrachtung | 107 |
| 8. | Beurteilung und Diskussion der Ergebnisse | 108 |
| 8.1 | Kritische Beurteilung der Stichproben | 108 |
| 8.2 | Vergleich mit dem Ausland | 109 |
| 8.3 | Vergleich mit Empfehlungen zu Grenzwerten | 110 |
| 8.4 | Bezug zu den Ergebnissen der Erhebungsmessungen zur externen | |
| | Strahlenexposition | 113 |
| 9. | Zusammenfassung | 116 |
| 10. | Literaturhinweise | 119 |
| 11. | Liste der Abbildungen | 124 |
| 12. | Liste der Tabellen | 128 |
| Anhang | | |
| A 1 | Begriffe, Definitionen, Zerfallsreihen | 1.30 |
| A 2 | Filtermeßverfahren | 1.34 |
| A 2.1 | Wirkungsgrad des Detektors | 134 |
| A 2.1.1 | Wirkungsgrad von 214-Po | 134 |
| A 2.1.2 | Berechnung der Wirkungsgrade bei anderen α -Energien | 134 |
| A 2.1.3 | Auswirkung des Wirkungsgradfehlers bei 7,68 MeV auf die | |
| | Wirkungsgrade anderer α-Energien | 135 |
| A 2.1.4 | Wirkungsgradfehler der Teilchendichten | 137 |
| A 2.1.5 | Fehler aus der Bestimmung von Sammelzeit, Sammelvolumen, | |
| | Filterwirkungsgrad | 140 |
| A 2.2 | Schätzverfahren für Teilchendichten | 141 |
| A 2.2.1 | Schätzalgorithmus | 141 |
| A 2.2.2 | Gleichungsfehlerkovarianzmatrix | 141 |
| A 2.2.4 | Nachweisgrenzen | 144 |
| A 2.2.5 | Vergleichsmessungen mit der Universität Gießen 1978/79 | 148 |

Seite

| A | 3 | Logarithmische Normalverteilung | 154 |
|---|---|--|-----|
| A | 4 | Fragebogen aus den Erhebungsmessungen | 157 |
| A | 5 | Ergebnisse in Häusern: Gesamtüberblick | 160 |
| A | 6 | Resultate auf Kreisebene | 163 |
| A | 7 | Ergebnisse von Freiluftmessungen | 172 |

1. Einführung

1.1 Ausgangspunkt

Die natürliche Strahlenexposition des Menschen ist durch zwei Strahlungskomponenten bedingt: der Bestrahlung von außen durch kosmische Strahlung und durch Strahlung der natürlichen Radionuklide der Umwelt sowie der Bestrahlung von innen durch Inhalation natürlicher Radionuklide mit der Atemluft und durch Ingestion mit Nahrungsmitteln und Trinkwasser.

Im Rahmen eines vom Bundesminister des Innern geförderten Forschungsvorhabens wurden in den Jahren 1972-1975 Erhebungsmessungen in nahezu 30 000 Häusern und im Freien durchgeführt mit dem Ziel, die aus der natürlichen externen terrestrischen Strahlung resultierende Strahlenexposition und deren Schwankungsbreiten für die Bundesrepublik Deutschland zu ermitteln. Aus dem seinerzeit vorgelegten Bericht (BMI 78) geht hervor, daß die dadurch hervorgerufene Strahlenexposition der Bevölkerung im Mittel bei etwa 0,54 mSv/a effektiver Äquivalentdosis liegt. Verantwortlich für eine deutlich zivilisatorisch bedingte Erhöhung der internen Komponente ist die Inhalation von Radon.

Damals war eine Untersuchung des Beitrages, den Radon zur Strahlenexposition liefert, ausgeklammert worden. Der vorliegende Bericht behandelt daher die Messungen zur Ermittlung der Größe und der Schwankungsbreite der Exposition der Bevölkerung durch Radon und seine kurzlebigen Zerfallsprodukte.

1.2 Eigenschaften, Bedeutung und Quellen von Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten

Das Edelgas Radon hat drei Isotope mit den Massenzahlen 222, 220 und 219. Sie entstehen in den Zerfallsreihen von 238U, 232 Th und 235U. Die Halbwertszeiten sind 3,8 d, 56 s und 4 s (Abb. 1.1). Da natürliches Uran zu ca. 99 % aus 238U und nur zu ca. 0,7 % aus

²³⁵U besteht, ist ²¹⁹Rn von untergeordneter Bedeutung.

Die Konzentration von Radon (²²²Rn) und dessen kurzlebigen Zerfallsprodukten in Luft ist starken räumlichen und zeitlichen Schwankungen unterworfen. In Häusern hängt sie ab vom geologischen Untergrund, von der Bauweise der Häuser, vom Radiumgehalt der verwendeten Baumaterialen und von der Raumbelüftung (Abb. 1.2). Weitere Quellen können Wasser und Erdgas sein.

Wenn eine Radonquelle mögliches Eindringen von Bodenluft in das Haus ist, dann hängt die zu erwartende Konzentration im Haus von folgenden Parametern ab:

- dem mittleren Druckgefälle zwischen Haus und Boden,
- dem Strömungswiderstand von Boden und Fundament für Bodenluft bei bestimmtem Druckgefälle,
- der Radonfreisetzung im Erdboden um das Haus, einschließlich eventueller Sickerungen (dies bestimmt die Radonkonzentration in der Bodenluft),
- der Luftaustauschrate zwischen Haus und Außenluft.

Konventionell gebaute Keller sind im allgemeinen nicht luftdicht. Bodenluft kann durch Fugen, poröse Wände, Kellerfenster oder Durchführungen von Versorgungsleitungen in das Hausinnere gelangen. Relativ hohe Radonkonzentrationen sind in granitischen oder vulkanischen Gebieten zu erwarten, niedrige Konzentration z.B. in Muschelkalkgebieten.

Ein Teil der durch den Zerfall von Radium im Baumaterial gebildeten Edelgasatome gelangen durch diffusive und konvektive Transportprozesse in die Luft. Dennoch kann auf Grund des Radiumgehaltes des Baumaterials nicht unbedingt auf die Freisetzung von Radon geschlossen werden. Die Durchlässigkeit der Baumaterialien spielt dabei eine wesentliche Rolle. Bei hoher Temperatur gebrannte Baustoffe, z. B. Schlackensteine verhindern durch ihre glasartige Feinstruktur ein Austreten von Radon. Ebenso kann durch eine günstige Oberflächenbehandlung, z.B. Anstrich ein Austreten von Radon aus den Baumateria-

| THORIUN | ۸ | | | | | | Ra 228 12315 5,7 a 8- | ζ | Th 232 | |
|----------------------------|------------------------|---|--------|----------|--------|----------|-----------------------------|----------|--------|--|
| | | | | | | | | Ac 228 | | |
| | Pb 212 10,6 h β- | 4ª | Po 216 | <u>م</u> | Rn 220 | <u>م</u> | Ra 224 | <u>م</u> | Th 228 | |
| TI 208 1053 3,1 m ∮⁻ | <u>α</u> 36,2% | Bi 212 Bi 212 Bi 60,6 m β- 63,8% | | | | | | | | |
| | * Pb 208 200 stabil | <u>م</u> | Po 212 | | | | | | | |

| ACTINIU | w | | | | | | | | Th 231 1924 25,6 h 19- | <u>م</u> | U 235 27:10⁴ ₀ |
|---------------------------------------|-----------------------------|----------------------------------|------------------------------------|--------------------------|----------------|--------------------------------|-----------|----------|------------------------------|----------|-------------------|
| | | Bi 215 7,4 m ¢- | | At 219 0,9 m #- 3% | α 4 · 10-3% | Fr 223 2403 22 m 8-~100% | α 1,2% | Ac 227 | <u>م</u> | Pa 231 | |
| | Pb 213 2013 36,1 m β- | <u>~</u> 100% | Po 215 2023 1,8 ms β-5-10-1% | <u>م م</u> | Rn 219 | ά | Ra 223 | <u>م</u> | ▲ Th 227 | | |
| TI 207 ACC 4,8 m <i>β</i> - | <u>α</u> 99,68% | Bi 211 Δτ. 2,15 m β- 0,32% | <u> </u> | At 215 ~100 μs | | | | | | | |
| | ¥Pb 207 ™siabii | <u>م</u> | * Po 211 | | | | | | | | |

| | URAN-RA | ADIUM | | | | | | | Th 234 124 2 4,1 d ^{β-} | | U 238 19 4 ,5·10'a |
|-----------------------|----------------------------|-------------------------------------|---------------------------------|-----------------------------------|---------------|--------|----------|---------------------|---|--------|------------------------------|
| | | | | | | | | | | Pa 234 | |
| | | РЬ 214 2013 26,8 m <i>β</i> - | 4 99,98% | Po 218 2003 3,05 m β- 0,02% | <u>«</u> | Rn 222 | <u>م</u> | Ra 226 85 1600 a | Th 230 | - | U 234 |
| | TI 210 tree 1,3 m Ø- | <u>α</u> 0.04% | Bi 214 Bi 214 β- 99,96% | | AI 218 ~2s | | | | | | |
| Hg 206 8,1 m β- | 0,75 · 10-*% | Pb 210 22 a β-~100% | | Po 214 | | | | | | | |
| | TI 206 270 4,3 m β- | <u>a</u> 5 · 10 · 1% | Bi 210 1211 5,0 d β-∼100% | | | | | | | | |
| | | Pb 206 | α | Po 210 | | | | | | | |

Abb. 1.1 Die natürlichen Zerfallsreihen

lien in die Raumluft verhindert werden. Weitere Quellen können Wasser sowie Erdgas sein.



Abb. 1.2 Quellen für Radon in Häusern

Die Radonkonzent**ra**tion in Räumen steigt wie die Konzentration anderer Schadstoffe, wie z.B. Formaldehyd (aus Klebstoff), Pentachlorphenol (aus Holzschutzmitteln) und Lösungsmitteln allgemein mit sinkendem Luftaustausch mit außen stark an. Energiesparmaßnahmen haben in letzter Zeit zu einer ständigen Verringerung der Luftwechselraten beigetragen.

1.3 Physikalische Vorgänge in der Raumluft

Durch den Zerfall von Radon entsteht Polonium zunächst als freies Ion. Wasserdampf oder Spurengase lagern sich sehr schnell um dieses Ion und bilden eine sog. "Cluster", einen Verband von mehreren Molekülen mit einem Durchmesser von 2 bis 20 µm. Das freie Ion oder

dieser Verband von wenigen Molekülen wird als "freies oder unangelagertes" Zerfallsprodukt bezeichnet. Diese sind sehr beweglich und neigen dazu sich an Oberflächen im Raum oder an in der Luft befindliche Aerosole anzulagern (Abb. 1.3). An Oberflächen abgeschiedene Zerfallsprodukte, frei oder aerosolgebunden, bleiben mit hoher Wahrscheinlichkeit an den Oberflächen. In der Luft befindliche angelagerte Zerfallsprodukte haben einen Durchmesser von 50 - 500 µm und sind relativ träge. Die Abreicherung durch Oberflächenabscheidung geschieht sehr viel langsamer. Beim α -Zerfall eines an ein Aerosol gebundenen ²¹⁸Po Atoms erfährt das entstehende ²¹⁴ Pb Atom eine Rückstoßenergie von ca. 110 keV. Diese Energie reicht aus, um mit einiger Wahrscheinlichkeit das ²¹⁴Pb vom Aerosol zu trennen. Wird es nicht gleich wieder an das Aerosol angelagert, verhält es sich wie oben beschrieben. Die übrigen Zerfälle sind β -Zerfälle. Die resultierende Rückstoßenergie beträgt nur einige eV und reicht zu einer Trennung nicht aus. Auf Grund dieser Vorgänge, ist in der Raumluft nie mit radioaktivem Gleichgewicht zwischen Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten zu rechnen. Der Grad der Abreicherung wird als Gleichgewichtszustand bezeichnet (vergl. Anhang). Als Maß für die Konzentration der Zerfallsprodukte in Luft wird die potentielle α -Energiekonzentration verwendet. Dies ist die Summe der Energien aller möglichen α -Zerfälle von ²¹⁸Po bis ²¹⁴Po einschließlich. Der Gleichgewichtsfaktor F ist der Quotient aus tatsächlicher potentieller α -Energiekonzentration in Luft zu der maximal möglichen, nämlich dann, wenn radioaktives Gleichgewicht zwischen Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten in Luft besteht.

Welcher Gleichgewichtszustand sich in der Raumluft einstellt, hängt ab von der Luftaustauschrate nach außen, der Aerosolkonzentration im Raum sowie des Oberflächen- zu Volumenverhältnisses des Raumes.



Abb. 1.3 Physikalisches Verhalten von Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten in Luft (Po 84).

Der Einfluß der Aerosolkonzentration auf den Gleichgewichtsfaktor soll am folgenden Beispiel verdeutlicht werden. In einem abgeschlossenen Raum werden über mehrere Tage die Radon- und die Zerfallsproduktkonzentration kontinuierlich gemessen. Durch eine künstliche Quelle wird eine mittlere Radonkonzentration von 3.3 kBq m⁻³ in Luft eingestellt. In Abb. 1.4 ist der zeitliche Verlauf der Radon- und der Zerfallsproduktkongentration sowie der daraus resultierende Gleichgewichtsfaktor dargestellt. Bei Temperaturen von 17 bis 27°C und einer relativen Luftfeuchte von 40-60 % stellt sich ein mittlerer Gleichgewichtsfaktor von 0.25 ein. Am 12. Tag werden in bestimmten Zeitabständen mehrere Zigaretten in diesem Raum geraucht. Bedingt durch das mehrfache Öffnen des Raumes fällt die Radonkonzentration um ca. 1/3 ab, während gleichzeitig die Zerfallsproduktkonzentration leicht ansteigt. Der Gleichgewichtsfaktor erhöht sich durch den Zigarettenrauch (Aerosolkonzentration!) auf 0.6. Wird in dem Raum nicht mehr geraucht, stellt sich nach einiger Zeit der ursprüngliche Zustand wieder ein.



Abb. 1.4 Einfluß von Zigarettenrauch auf den Gleichgewichtsfaktor.

1.4 Inhalation von Radon und dessen kurzlebigen Zerfallsprodukten

Aufgrund ihrer Edelgaseigenschaften wird Radon im Gewebe nicht chemisch gebunden. Die Aktivitätsaufnahme ist durch die Löslichkeit im Körpergewebe begrenzt, die von der Radonkonzentration der Umgebungsluft abhängt (Ja 80). Dabei spielen die Aufnahme aus der Luft in das Blut, die Verteilung über die Blutbahn, die Diffusion vom Blut in die Zellflüssigkeit und der radioaktive Zerfall während des Transports eine Rolle. Die Aufnahme in das Blut geschieht über die Lunge. Da die mittlere Zirkulationszeit ca. 1 min beträgt, ist auch für Thoron mit dem Erreichen der Sättigungslöslichkeit im Blut zu rechnen. Die Aufnahme von Radon aus dem Blut ins Körpergewebe geschieht mit Halbwertszeiten von Minuten bis Stunden. Für Radon wird die Sättigungslöslichkeit erreicht, während Thoron durch die kurze radioaktive Halbwertszeit nur in der Lunge von Bedeutung ist. Die Inhalation von Radon führt zu einer gleichmäßigen Dosisverteilung im Körper mit Ausnahme der Lunge und des Fettgewebes, bedingt durch die hohe Radonlöslichkeit.

Die Aufnahme von kurzlebigen Zerfallsprodukten von Radon in den Körper ist wegen der Schwermetalleigenschaften grundsätzlich verschieden von der Aufnahme der Edelgase. Die Zerfallsprodukte werden abgeschieden und dadurch angereichert. Da die Depositionswahrscheinlichkeit im Atemtrakt u.a. abhängt von der Teilchengröße, unterscheiden sich die aerosolgebundenen Zerfallsprodukte von den freien Atomen oder Ionen und werden daher getrennt betrachtet.

Nach ihrer Abscheidung werden die Zerfallsprodukte von den im Atemtrakt ablaufenden Transportvorgängen erfaßt. Dabei kommt es entweder zu einer Abreicherung über das Blut oder zu einer Abreicherung in den Magen, hervorgerufen durch den durch die Ciliarbewegung in den Bronchien verursachten Schleimtransport und anschließendem Verschlucken. Da die biologische Halbwertszeit sehr viel größer als die radioaktive Halbwertszeit ist, zerfällt der größte Teil der kurzlebigen Zerfallsprodukte im Atemtrakt. Die Strahlenbelastung wird durch die Zerfallsprodukte und nicht durch das Edelgas selbst verursacht. Aus diesem Grund ist es bei der Abschätzung der Dosis wichtig, die Konzentration der Zerfallsprodukte in Luft zu kennen.

1.5 Ziel der Meßreihe

Über den Umfang der Strahlenexposition der Bevölkerung durch Radonzerfallsprodukte lagen zu Beginn des Forschungsvorhabens nur wenige Anhaltspunkte vor. Es war daher das Anliegen des Bundesministers des Innern, Erhebungsmessungen zur Ermittlung der Größe und der Schwankungsbreite dieser wichtigen Komponente der natürlichen Strahlenexposition durchzuführen. Die Kenntnis dieser Schwankungsbreite ist Voraussetzung für Strahlenschutzmaßnahmen im Bereich des Umweltschutzes und dient gleichzeitig als Grundlage für mögliche Ergänzungen gesetzlicher Bestimmungen. Es sei darauf hingewiesen, daß mit diesen Erhebungsmessungen primär das Ziel verfolgt wurde, die derzeitige Strahlenexposition der Bevölkerung zu ermitteln, weniger, ursächliche Zusammenhänge zu erforschen. Dies war separaten Forschungsvorhaben vorbehalten.

Entscheidend für die Durchführung der geplanten Erhebungsmessungen war die Wahl des geeigneten Meßverfahrens. Für die Ermittlung der Konzentration von Radon und seinen Zerfallsprodukten gab es bis vor einigen Jahren nur sehr aufwendige Methoden, die meist auch nur Stichprobenmessungen zuließen. Zunächst wurde damit begonnen, nach geeigneten Meßverfahren für Radon und Zerfallsprodukte zu suchen. Es wurden auch in anderen Instituten,z.B. die Institute für Biophysik der Universitäten des Saarlandes und Gießen sowie am Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes Meßverfahren zur Durchführung von Kurzzeitmessungen ("Punktmessungen") entwickelt. Mit diesen Verfahren wurden dann kleine Meßreihen durchgeführt.

Wichtig ist angesichts der starken tageszeitlichen und saisonalen Schwankungen der Radonkonzentration ein einfaches Meßgerät mit gutem zeitlichen Integrationsverhalten. Ein derartiges Meßgerät, mit dem kostengünstig viele Messungen durchgeführt werden können

und das auch für die Erhebungsmessungen zum Einsatz kam, wird im Kapitel 3 beschrieben. Diese Methode ist auf die Registrierung des Radongases ausgelegt, nicht auf die Messung der dosisrelevanten Zerfallsprodukte. Daher waren zusätzliche Untersuchungen notwendig, die es gestatten, das radioaktive Gleichgewicht zwischen Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten anzugeben.

Auf die Ermittlung der Dosis, die durch Thoron und seine Zerfallsprodukte hervorgerufen wird, mußte wegen Fehlens geeigneter Meßgeräte im Rahmen der Erhebungsmessungen verzichtet werden.

2. Meßverfahren: Momentane Konzentration von Radon- und Thoronzerfallsprodukten in Luft

Meßverfahren zur Bestimmung der momentanen Konzentration von Radon- und Thoronzerfallsprodukten in Luft benutzen eine Detektorfilterkombination sowie mehr oder weniger aufwendige Auswerteelektronik. Zur Messung wird zunächst Luft durch ein Filter gesaugt und dabei werden die Radon- bzw. Thoronzerfallsproduktaerosole auf dem Filter abgeschieden. Es gibt verschiedene Vorgehensweisen die Filteraktivität zu bestimmen. Einige Verfahren registrieren die Zerfälle auf dem Filter bereits während des Sammelvorgangs, andere nicht. Ebenso werden die verschiedensten Zählintervalle nach Beendigung des Sammelvorgangs benutzt, sowohl für Bruttomessung von α - und β -Teilchen als auch bei alphaspektrometrischer Auswertung.

2.1 Sammelvorgang

2.1.1 Filter

Es soll ein Filter im Sinne eines optimalen Sammelergebnisses ausgewählt werden, dessen maximale Durchlässigkeit nicht mit dem Maximum der Aerosolteilchengrößenverteilung in Wohnräumen zusammenfällt und nicht bei verwendeter Luftdurchsatzgeschwindigkeit liegt.

Eine Kennzeichnung der Filter geschieht durch Angabe der Retention. Dabei wird das Rückhaltevermögen eines Filterpapiers durch die Angabe des Abscheidegrades für definierte Niederschläge umschrieben. Zur Bestimmung des Abscheidegrades werden nach DIN 24 184 (3) Ölnebeltestaerosole (A) mit einem Teilchendurchmesser von weniger 10^{-6} m, wobei das Häufigkeitsmaximum der Teilchengrößenverteilung zwischen 0,5 und 0,3 10^{-6} m liegt oder radioaktiv indizierte Aerosole (B) mit Häufigkeitsmaximum der Teilchendurchmesser von weniger als 0,3 10^{-6} m verwendet.

Retention des verwendeten Glasfaserfilters (STA) Abscheidegrad 99,97 % für (A) 99,95 % für (B)

Messungen eines zweiten Filters hinter dem eigentlichen Filter waren nicht von Messungen eines unbestaubten Filters zu unterscheiden.

2.1.2 Sammelwirkungsgrad

Es hat sich gezeigt, daß die flächenbezogene Filteraktivität nicht über das gesamte Filter konstant ist.

Es wurden einzelne Filterteile ausgemessen, Filterzentrum und Rand. Dabei traten bei den Randflächen höhere Impulsraten auf als im Zentrum, bezogen auf Flächeneinheit unter Berücksichtigung des zeitlichen Verlaufes der Filteraktivität sowie der Nulleffekte. Es wären folgende Gründe denkbar:

- Gebläse saugt nicht über gesamte Filterfläche gleich stark, d.h. der flächenbezogene Volumenfluß ist über Filterfläche nicht konstant;
- der Filterwirkungsgrad ist nicht konstant über das gesamte Filter bzw. die Sammeldichte der einzelnen Folgeprodukte ist nicht über das gesamte Filter konstant; dies ist im Hinblick auf Wirkungsgradangabe in
- (STA) unwahrscheinlich;
- verschiedene Detektoransprechwahrscheinlichkeiten.
 Konnte durch Verwendung des gleichen Detektors unter gleichen geometrischen Bedingungen durch wiederholtes wechselseitiges Messen ausgeschlossen werden.

Einige Filter zeigen nach Besaugen im Zentrum kleine Löcher durch ausgerissene Fasern, deren Flächendichte nach außen abnimmt. Diese sind dann für diese Zwecke nicht geeignet.

2.2 Meßvorgang

2.2.1 Detektor

An den Detektor sind folgende Anforderungen zu stellen:

- möglichst hoher α -Wirkungsgrad, bei gleichzeitig β-Wirkungsgrad > 0, um auch bei kleinen Rn-Folgeproduktkonzentrationen in der Luft eine ausreichend hohe Zählrate im Hinblick auf annehmbaren statistischen Fehler zu erhalten.
- 2. Großflächendetektor, durch Filtergröße vorgeschrieben.

Um die Aktivität des 200 mm \emptyset Filters zu bestimmen, wird ein Großflächendurchflußzählrohr verwendet. Als Endfenster nimmt man Folie mit Flächengewicht von 0,9 mg/cm⁻; diese Folie ermöglicht noch einen guten Wirkungsgrad bei den hier auftretenden α -Energien und ist noch ausreichend stabil gegen äußere mechanische Zerstörung.

Ein Zählrohr in dieser Größe hat sich als notwendig erwiesen aus folgenden Gründen:

- Es mußte ein Filter mit 200 mm Ø verwendet werden, um einen genügend hohen Luftdurchsatz (ca. 10 % des Raumvolumens) in relativ kurzer Zeit (geringe Halbwertszeit ²¹⁸Po, 3,05 min) zu erhalten. Der mittlere Durchsatz beträgt 0,8 m⁻³/ min.
- Ein Messen des gesamten Filters und nicht von Filterteilen ist wichtig, da
 - auf dem Filter keine homogene Belegung mit Rn-Folgeprodukten vorliegt und
 - durch Zählen höherer Impulsraten eine bessere Statistik erreicht wird.

2.2.1.1. Gasversorgung

An die Gasversorgung des Detektors sind folgende Anforderungen zu stellen:

- 1. ausgeprägtes α -Plateau, bei geringer β -Querempfindlichkeit, ausreichender Wirkungsgrad;
- 2. möglichst einfach zu beschaffendes, handelsübliches Gas, um im Sinne hoher Mobilität eine zu große Bevorratung zu vermeiden und nicht an ein paar wenige Versorgungsquellen mit unter Umständen langen Anfahrtswegen gebunden zu sein;
- 3. möglichst einfach zu handhabendes Gas (Brennbarkeit, kritisches Gas-Luft-Gemisch o.ä.).

Diese Forderungen stehen sich zum Teil entgegen. Es bietet sich an für Forderungen:

- 1. Argon-Methan, Methan
- 2. Camping-Gas (Butan)
- 3. Argon-Methan.

Es wurden Versuche mit verschiedenen Gasen durchgeführt, wobei sich Argon mit 10 % Methan als brauchbarstes gezeigt hat. Es erfüllt die Forderungen 1 und 3. Andere Gase - es wurde als Beispiel Butan in handelsüblicher Form (Camping-Gas) untersucht erfüllen außer der besonderen Wirtschaftlichkeit und besonders leichter Beschaffungsmöglichkeit keine der gestellten Forderungen. Butan hat sich als unbrauchbar erwiesen: Es zeigt weder ein ausgeprägtes Plateau, noch ausreichenden Wirkungsgrad, noch ausreichende Selektivität.

Der Gasverbrauch des Detektors ist relativ klein, so daß eine Bevorratung auch für längere Zeit problemlos ist und kaum ein Mobilitätsverlust auftritt. Mit einer 0,6 1-Flasche kann der Detektor 2 Tage ununterbrochen gespült werden. Nachteil der Argon-Methan-Gasversorgung ist nur der im Vergleich hohe Kostenaufwand. Die Vorteile überwiegen jedoch. Deshalb wurde Argon-Methan als Zählgas ausgewählt.

Als Arbeitspunkt wurden 1200 V bei Argon-Methan gewählt. Die beta-Querempfindlichkeit im Arbeitspunkt beträgt ca. 0,3 % und darf gegenüber anderen Fehlern, die eine bis zwei Größenordnungen höher liegen, vernachlässigt werden.

2.2.1.2 Detektorwirkungsgrad

Im Sinne eines besseren Wirkungsgrades war es vorteilhaft, ein Zählrohr zu verwenden, dessen Fenster größer ist als der zu messende Filter, da die Empfindlichkeit zum Rand hin abnimmt, in den Ecken bis zum Faktor 2 in Bezug auf Detektormitte.

In Abb. 2.1 sind Wirkungsgrade einzelner Detektorzonen eingezeichnet. Der nicht benötigte Teil des Detektorfensters wurde mit Elektrolytkupfer abgedeckt, was gleichzeitig auch eine Nulleffektverbesserung um den Faktor 3 bewirkt. Der nicht benötigte Teil konnte vorher als elektrostatischer Sammler für Radon-Folgeprodukte wirken.

Bestimmen des Detektorwirkungsgrades

Es wurde ein bestaubtes Filter zur Eichung verwendet, um möglichst gleiche Bedingungen wie bei der Anwendung zu haben. Dieses Filter mit ²²⁰Rn und ²²²Rn Folgeprodukten wurde gleichzeitig durch die zu kalibrierende Meßapparatur sowie γ -spektroskopisch ausgewertet.

Die Kalibrierung des NaJ(T1)-Kristalls wurde mit ²²⁶Ra im Gleichgewicht mit Folgeprodukten, PTB-Probe von 51,2 nCi mit max. 3 % Fehler, vorgenommen.

Zur Auswertung am besten geeignet zeigte sich die 609 keV- γ -Linie des ²¹⁴Bi (RaC), da andere Linien weniger deutlich waren.

Hieraus ergab sich direkt der Wirkungsgrad für 7,68 MeV α-Strahlung des ²¹⁴Po. Die Wirkungsgrade für die anderen alpha-Energien wurden errechnet. Selbstabsorption durch Staubschicht auf den Filtern ist nicht zu erwarten und muß deshalb nicht besonders berücksichtigt werden. Die Durchführung der Rechnung (siehe Anhang 2).



Abb. 2.1 α -Wirkungsgrade verschiedener Detektorbereiche (^{2 4 1}Am)



Abb. 2.2 Aufbau des Zählers zur Messung der Filteraktivität

Es wurden folgende Wirkungsgrade aus (A 2.5)

$$N_{i} = 1/2 \{1 - (1-2 n_{4}) (\frac{E4}{Ei})^{3}/2\}$$

errechnet:

| Element | α-Energie MeV | errechneter Wirkungsgrad | 2 J-Fehler |
|---|------------------|-----------------------------|-------------------|
| | | | |
| ^{2 1 8} Po | 6,0026 | 0,3243 | <u>+</u> 0,057 |
| ^{2 1, 4} Po | 7,687 | 0,3788 | <u>+</u> 0,012 |
| ² ¹ ² Bi | 6,05 | 0,3264 | <u>+</u> 0,050 |
| | 6,09 | 0,3281 | <u>+</u> 0,050 |
| ^{2 1 2} Po | 8,784 | 0,4008 | <u>+</u> 0,008 |

Tab. 2.1: α-Wirkungsgrade der ²²²Rn und ²²⁰Rn-Folgeprodukte

2.2.2 Zähler

Da die spezifische Aktivität von kurzlebigen Rn-Folgeprodukten in Wohnräumen bestimmt werden soll, ist ein mobiles Gerät vorteilhaft. Es soll ein Kompaktgerät verwendet werden, das folgende Forderungen erfüllt:

- 1. Handlichkeit
- 2. Hochspannungsversorgung für Detektor
- 3. Verstärker für zu zählende Impulse
- 4. Digitalzähler mit Drucker
- 5. wählbare Zählzeitintervalle
- 6. Stromversorgung bei Netz oder 12 V
- 7. Ausdruck der Uhrzeit

Es wurden mehrere Gerätekombinationen bei Durchführung einer kleinen Meßreihe in Wohnräumen getestet, nur eine erfüllte obige Anforderungen annähernd.

2.3 Auswertemethodik

2.3.1 Bestimmen der Teilchendichten in Luft

Zur Bestimmung der Teilchendichten der Radon-Folgeprodukte in der Luft muß ein System linearer Differentialgleichungen erster Ordnung gelöst werden; einmal für den Sammelvorgang und einmal für den Meßvorgang.

Für die i-te Differentialgleichung erhält man aus einer Teilchenzahlenbilanz:

| (| dN i | $= -\lambda_{i} N_{i} dt + \lambda_{i-1} N_{i-1} dt + k v n_{i} dt $ (Gl. 2.1) |
|--|------------------|---|
| mit: | λ _i : | Zerfallskonstante |
| 1 | N _i : | Teilchenzahlen |
| (| dt: | Zeitintervall |
| | v: | Volumenfluß an Luft durch Filter, für Meßvorgang |
| 1 | n _i : | Teilchendichte in Luft |
| wobei: dl | N _i : | Änderung der Teilchenzahl des i-ten Folgeproduktes j-ter Zerfallsreihe im Zeitintervall dt |
| N _i d | dt: | durch Zerfall von i-tem zu (i+1)-tem Folgeprodukt übergegangene Teilchenzahl im Zeitintervall dt |
| ^λ i-1 ^N i-1 ^O | dt: | im Zeitintervall dt aus i-1-tem Folgeprodukt nach- gebildete Teilchenzahl |
| | | |

k v n_i dt: durch Filter in Zeit dt gesammelte Teilchenzahl darstellen.

Als Lösung des Differentialgleichungssystems erhält man die Teilchenzahl N_i(t) der einzelnen kurzlebigen Folgeprodukte auf dem Filter:

$$N(t) = K H n$$
 (G1. 2.2)

wobei <u>n</u>: Teilchendichtensektor in Luft

- H: Matrix, Sammelvorgang
- K: Matrix, Meßvorgang

Gemessen wird jedoch die Summe der α -Aktivitäten der Folgeprodukte auf dem Filter. Es soll dabei die α -Aktivität des ²¹⁴Bi mit einer Zerfallswahrscheinlichkeit von weniger als 0,01 % nicht berücksichtigt werden.

Die Filteraktivität zum Zeitpunkt t nach Sammelende wird

 $A(t) = \lambda_{1} N_{1}(t) + \lambda_{4} N_{4}(t) + 0,362 \lambda_{6} N_{6}(t) + \lambda_{7} N_{7}(t) \quad (Gl. 2.3)$

mit:

2 ²¹⁴Pb 3 ²¹⁴Bi 4 ²¹⁴Po 5 ²¹²Pb 6 ²¹²Bi 7 ²¹²Po

1 ²¹⁸Po

oder in Matrizenschreibweise

$$A(t) = \underline{C}^{*T} \underline{K(t)} \underline{H} \underline{n} \qquad (GL. 2.4)$$

wobei $C^* = (\lambda_1, 0, 0, \lambda_4, 0, 362, \lambda_6, \lambda_7)$

darstellt.

Mit diesem Meßverfahren wird eine mittlere Aktivität zur Zeit t über ein Zeitintervall T_j gemessen. Man erhält eine mittlere Impulsrate J (t_j , T_j) aus dem Zeitintegral

$$J(t_{j}, T_{j}) = \frac{1}{T} \int A(t) dt$$
 (G1. 2.5)



Abb. 2.3 Typischer Aktivitätsverlauf eines Filters

Mit Berücksichtigung der Wirkungsgrade für die einzelnen α -Energien, in Matrizenschreibweise für alle m Messungen, erhält man einen Impulsratenvektor als Funktion der gesuchten Teilchendichten in Luft n

$$J = C \underline{K} \underline{H} \underline{n}$$
 (G1. 2.6)

Einen typischen Verlauf einer Filteraktivität zeigt Abb. 2.1. Mit der Annahme:

> es liege Gleichgewicht vor zwischen dem sehr kurzlebigen ²¹⁴Po bzw. ²¹²Po mit ihren vergleichsweise langlebigen Vorgängern in der Zerfallsreihe ²¹⁴Bi bzw. ²¹²Bi,

läßt sich der Grad des Gleichungssystems erniedrigen. Diese Annahme ist realistisch, da der Zerfall des Tochterproduktes praktisch mit dem Zerfall der Muttersubstanz eintritt, bei ²¹⁴Po 164 μ s, bei ²¹²Po 304 ns danach. Es ist also

$$\lambda_3 N_3 = \lambda_4 N_4$$

0,638 $\lambda_6 N_6 = \lambda_7 N_7$

Dies gilt sowohl auf dem Filter als auch in der Luft. Es müssen danach nur die Teilchendichten ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²¹²Pb, ²¹²Bi berechnet werden.

Prinzipiell würden fünf Messungen zur Bestimmung der Teilchendichten in Luft ausreichen. Der Fehler bei der Bestimmung wird jedoch mit zunehmender Anzahl der Messungen kleiner, weshalb mehr als fünf Messungen gemacht wurden. Zur Auswertung des überbestimmten Gleichungssystems soll ein sog. Parameterschätzverfahren angewandt werden. Man erhält nach dem Mimimum-Varianz-Verfahren die Teilchendichten aus

$$\underline{\hat{\mathbf{n}}} = (\underline{\mathbf{x}} \ \underline{\mathbf{v}}_{\underline{\mathbf{e}}}^{-1} \ \underline{\mathbf{x}})^{-1} \ \underline{\mathbf{x}} \ \underline{\mathbf{v}}_{\underline{\mathbf{e}}}^{-1} \ \underline{\mathbf{J}}$$
(G1. 2.7)

mit X = C * K * H

und $\underline{\hat{n}}$: geschätzter Teilchendichtenvektor in Luft $\underline{V}_{\underline{e}}$: Gleichungsfehler Kovarianzmatrix (siehe Statistikteil) \underline{J} : gemessener Impulsratenvektor

Das Schätzverfahren wird in Anhang 3 genauer erläutert.

2.3.2 Potentielle α -Energiekonzentration

Für eine Abschätzung der Lungendosis ist weniger die spezifische Aktivität als vielmehr die Summe der einzelnen potentiellen α-Energien der Folgeprodukte von Bedeutung. Sie soll in diesem Abschnitt ermittelt werden.

Die potentielle α -Energie eines Folgeproduktes ist die Summe aller α -Energien des Folgeproduktes und aller aus diesem entstehenden Folgeprodukte. Es werden dabei nur die kurzlebigen Folgeprodukte berücksichtigt. Für die potentielle q -Energiekonzentration E_{pot} der kurzlebigen ²²²Rn und ²²⁰Rn Folgeprodukte erhält man:

$$E_{\text{pot}} = \sum_{i=1}^{4} E_{\alpha i} n_{i} \text{ in MeV 1}^{-1}$$
 (G1. 2.8)

| i. | · <u> </u> | | E _i /MeV | E : potentielle Energie des Elements i |
|----|---------------------|-----|---------------------|---|
| 1 | ^{2 1 8} Po | RaA | 13,68 | |
| 2 | ²¹⁴ Pb | RaB | 7,69 | |
| 3 | ²¹⁴ Bi | RaC | 7,69 | * als Summe: |
| 4 | ^{2 1 2} Pb | ThC | 7,8* | $0,362 * 6,09 \text{ MeV} (^{212}\text{Bi})$ +0.638 * 8.78 MeV (^{212}\text{Po}) |
| | ²¹² Bi | ThC | | |

Es ist üblich, die Einheit "Working Level" zu verwenden

$$1 \text{ WL} = 1,3 \times 10^{-5} \text{ MeV} 1^{\pm 1}$$

in S I-Einheiten

1 WL = 2,1 Joule/
$$m^{-3}$$
 Luft.

Damit wird

$$\frac{E_{\text{pot}}}{WL} = \frac{1}{1,3\cdot10^5} \frac{4}{1} \frac{n_{i}}{1.1^{-1}} \frac{E_{\alpha i}}{MeV}$$
(G1. 2.9)

2.3.3 Fehlerbetrachtung

Der Gesamtfehler setzt sich jeweils aus den 20-Fehlern aus

- Schätzfehler für Teilchendichten
- Wirkungsgradfehler
- Fehler während des Sammelns

zusammen.

Andere Fehler sind mindestens eine Größenordnung kleiner und werden nicht berücksichtigt.

Für die einzelnen Teilchendichten erhält man

$$\frac{2\sigma n_{i}}{n_{i}} = 2 \left(\frac{\sigma n_{i}s}{n_{i}}\right)^{2} + \left(\frac{\sigma n_{i}w}{n_{i}}\right)^{2} + \left(\frac{\sigma n_{i}v}{n_{i}}\right)^{2}$$
(G1. 2.10)

sowie mit Gl. 2.8 für die potentielle Energiekonzentration

$$\frac{2\sigma E_{\text{pot}}}{E_{\text{pot}}} = \frac{2}{E_{\text{pot}}} (13,68 \frac{\sigma n_1}{n_1})^2 + 7,68^2 (\frac{\sigma n_2^2}{n_2^2} + \frac{\sigma n_3^2}{n_3^2}) + 7,8^2 \frac{\sigma n_4^2}{n_4^2}$$
(G1. 2.11)

7,8 MeV für Zerfall von 212 Bi bzw. 212 Po gemittelt zur 8,78.0,638 MeV + 6,09.0,362 MeV

Für die Herleitung der einzelenen Fehlerkomponenten siehe Anhang 2

on_i,s : Schätzfehler für Teilchendichten
on_i,w : Wirkungsgradfehler
on_i,v : Fehler während des Sammelns

3. Meßverfahren: Integrierende Messungen

3.1 Meßverfahren für Erhebungsmessungen

Derzeit gebräuchliche Meßverfahren lassen sich in zwei große Gruppen unterteilen, aktive und passive Meßverfahren. Aktive Meßverfahren benötigen zum Betrieb eine externe Energieversorgung, sie arbeiten überwiegend mit Pumpen und Auswerteelektronik. Passive Meßverfahren arbeiten ohne Energieversorgung, haben keine beweglichen Teile oder Elektronik und benutzen als Detektoren überwiegend Thermolunineszenzdetektoren (CaSO₄: Dy, LiF) oder Kernspurdetektoren (Polykarbonat, Zellulosenitrat). Radondosimeter benutzen alle passive Detektoren. Dennoch gibt es mehrere prinzipiell unterschiedliche Meßverfahren für Radondosimeter. Aktive Dosimeter arbeiten zwar mit einem passiven Detektor, benötigen aber zum Betrieb einer Pumpe eine Stromversorgung. Luft wird durch ein Filter gesaugt. Dabei werden die in der Luft befindlichen Radonzerfallsprodukte auf dem Filter abgeschieden. Dem Filter gegenüberliegend ist ein passiver Detektor angebracht, der die α-Zerfälle vom Filter registriert.

Ein rein passives Dosimeter arbeitet ohne Stromversorgung. Radon diffundiert durch ein Filter in das **Innere** einer abgeschlossenen Kammer. Ein Detektor in der Kammer registriert a-Teilchen von Radon und seinen in der Kammer entstandenen Zerfallsprodukten aus dem Volumenbereich und von Oberflächen. In der Luft befindliche Radonzerfallsprodukte und andere Aerosole werden durch das Filter zurückgehalten. Dieses Dosimeter wird als "Diffusionskammer " bezeichnet. Es wird nur Radon gemessen.

Ein weiteres rein passives Dosimeter besteht aus einer offenen Kammer oder einem blanken Detektor. Der Detektor registriert alle α -Teilchen aus einem bestimmten Volumenbereich der Umgebungsluft. Es findet keine Trennung nach Radon und Zerfallsprodukten statt. Dabei ist i.a. nur eine Aussage über die Bruttoalphaaktivität ohne nuklidspezifische Trennung möglich, wenn der Gleichgewichtszustand zwischen Radon und seinen Zerfallsprodukten in Luft nicht bekannt ist. Einige dieser unterschiedlichen Radondosimeter sind in Tab. 3.2 aufgelistet.

Der Hauptnachteil von TL-Detektoren ist die verhältnismäßig kleine α - Empfindlichkeit bei gleichzeitig hoher β/γ -Empfindlichkeit. Aus diesem Grund muß ein zweiter abgeschirmter TL-Detektor zur Diskriminierung der externen Strahlung verwendet werden. Der nicht abgeschirmte TL-Detektor ist auch empfindlich für Aerosoldeposition. Regulla /Re 80/ gibt an, daß dünne CaSO₄: Dy Detektoren die beste γ -Diskriminierung und deshalb die höchste α -Empfindlichkeit haben. Zur Zeit ist jedoch dieser Detektor noch nicht kommerziell erhältlich. Aus diesem Grund wird ein Kernspurdetektor für das Radondosimeter verwendet.

Tab. 3.1 Integrierende Dosimeter für Radon und Zerfallsprodukte

| Sammelverfahren | Art des Detektors | Meßzeit | Luftdurch - satz/ Hochspannung | Nachweis- grenze | Anwendungs- gebiet | Quelle |
|----------------------|---|---------------------------------|---|------------------------|-----------------------|----------------------------------|
| | | Akti | ve Verf | ahren | | |
| nur Zerfallsprodukte | TLD CaF ₂ :Dy | 1 Woche/ 1 Monat | 0.1 l/min | - | Bergwerk | /Mc 79/ |
| Filter | Kernspurdetektor Zellulosenitrat | mehrere Wochen Batterie <15h | 0.007 l/min | 3.10 ⁻² WIM | Bergwerk | /Au 71/ |
| Stromversorgung | Kernspurdetektor Zellulosenitrat | 1 Woche Batterie <18h | 5.0 l/min | - | Bergwerk | /Du 78/ /Ch 72,78/ /Ph 78/ |
| | TLD LiF | 1 Woche Batterie <10h | 5.4 l/min | 6•10 ⁻³ WLM | Bergwerk | /Br 76/ /Gu 79/ |
| | Kernspurdetektor Zellulosenitrat ¹⁾ | - | 0.1 l/min | 4·10 ⁻³ WLM | Bergwerk | /Fr 77,79/ |
| | TID Ca SO4 | < 170h | 2.0 l/min | 4·10 ⁻³ WIM | Bergwerk | /Не 78/ |
| | TLD CaSO4 | < 170h | 0.13 l/min | 7.10 ⁻⁴ WLM | Bergwerk/Haus | /Hu 78/ /Re 80/ |

¹ Trennung verschiedener α-Energiegruppen
 ² wahrscheinlich CR 39
 ³ Elektrochemisches Ätzverfahren
| Sammelverfahren | Art des Detektors | Meßzeit | Luftdurch - satz/ Hochspannung | Nachweis- grenze | Anwendungs- gebiet | Quelle |
|-----------------------------|--|-------------|---|----------------------------------|-----------------------|--------------------------------|
| | | Passiv | e Verfa | hren | | |
| nur Radon | TLD LIF | 12 Wochen | 500 V - 900 V - | 4 Bqm ⁻³ pro Woche | Bergwerk, Haus | /Ge 77/ /Br 78/ |
| Diffusionskammer | נדוי | > 1 Woche | 1200 17 - | - 37 Bcr/m ³ | Berguerk | /Co. 80/ |
| Hochspannung | CaF ₂ | | 1200 V | pro Woche | Haus | /00/00/ |
| Batterien, | Kernspurdetektor | | | | | |
| elektrostatische | Zellulosenitrat | | | | Exploration | /Fl 72/ |
| Abscheidung | Plastikdetektor ² | 1 Monat | - | 15 Bq/m³ pro Monat | Umgebung | /Fl 78/ |
| | Kernspurdetektor Zellulosenitrat | 8-12 Monate | - | 660 Bq/m³ pro Monat | Haus | /Fr 79 , 77/ /Fr 73/ |
| | Kernspurdetektor ECE ³ Polykarbonat | 1-12 Monate | - | 33 Bq/m³ 8 Bq/m³ | Bergwerk, Haus | /Ha 78/ /Ma 80/ |
| Radon + Zerfallsprodukte | Plastik Kernspurdetector ³ | 1 Monat | - | 8 Bq/m³ pro Monat | - | /Al 80/ |

Tab. 3.2 Integrierende Dosimeter für Radon und Zerfallsprodukte

¹ Trennung verschiedener α-Energiegruppen
 ² wahrscheinlich CR 39
 ³ Elektrochemisches Ätzverfahren

<u>3.2 Nachweis von α-Teilchen durch elektrochemisches</u> <u>Ätzverfahren</u>

3.2.1 Detektormaterialien

Ein schweres geladenes Teilchen verursacht entlang seiner Bahn in einem elektrisch nichtleitenden Festkörper eine feine Spur von beschädigtem Material. Diese Störungen im Gefüge des Isolators werden als Kernspuren bezeichnet. Der Durchmesser dieser Kernspuren beträgt ca. 5-10 10^{-9} m /Fl 69/. Diese Störungen reagieren schneller als ungeschädigte Bereiche des Isolators mit bestimmten Lösungsmitteln, was dazu benutzt wird diese Spuren in einem Ätzvorgang als konische oder zylindrische Löcher auf 1-30 10^{-6} m zu vergrößern. In Abb. 3.1 ist dieser Vorgang zu verschiedenen Zeiten dargestellt. Ein Isolator ist dann als Kernspurdetektor geeignet, wenn die Oberflächenätzgeschwindigkeit v_B erheblich kleiner ist als die Kernspurätzgeschwindigkeit v_r. Die Ätzgeschwindigkeiten sind abhängig vom Material des Detektors sowie der Zusammensetzung des Lösungsmittels und der Temperatur.

Verschiedene schwere, stark ionisierende Teilchen verursachen unterschiedliche Schädigungen im Isolator. Dadurch wird es möglich, anhand der Kernspur das verursachende Teilchen zu identifizieren. Gleichzeitig werden leichte, nur schwach ionisierende Teilchen, wie β -Strahlen, nicht registriert. Je nach Art der Auswertung des Kernspurdetektors können z.B. mit Hilfe eines Elektronenmikroskopes 10¹¹ Spuren/cm² ausgewertet werden.

Ein als Kernspurdetektor geeignetes Material sollte folgende Eigenschaften haben:

- hohe Empfindlichkeit für das zu untersuchende Teilchen,
- Unempfindlichkeit für leichte Teilchen, Photonen,
- optische Transparenz,
- hohe Stabilität für Kernspuren, kein Fading.

Zur Zeit sind ca. 150 verschiedene Kernspurdetektormaterialen bekannt /Fl 75/. Die am häufigsten verwendeten Detektormaterialien sind Zellulosenitrat- und Polykarbonatfolien. Das derzeit bekannte empfindlichste Detektormaterial ist Alyldiglykolkarbonat (CR 39).

Sehr häufig verwendet wird ebenfalls das Polymerisat von Dioxiddiphenylpropan und Carbonylchlorid (MARKROFOL). Im Gegensatz zu CR 39 zeichnet sich MAKROFOL durch gleichmäßige Qualität verschiedener Produktionschargen und durch einen sehr kleinen Nulleffekt aus. MAKROFOL wird als Industriefolie in großen Mengen produziert. CR 39 kann derzeit noch nicht in ausreichender Qualität in großen Mengen hergestellt werden, einzelne Detektoren weisen Dickenschwankungen bis zum Faktor 2 auf, Die Nulleffektspurendichte ist um mehr als den Faktor 10 höher als bei MAKROFOL. Damit wird der Vorteil der höheren Empfindlichkeit von CR 39 gegenüber MAKROFOL aufgehoben. Das Signal-Rauschverhältnis ist trotz der geringeren Empfindlichkeit bei MAKROFOL besser. Nicht zuletzt wegen der hohen Sprödigkeit von CR 39 und damit wegen der schwierigen Handhabung in großen Serien wird für das Dosimeter MAKROFOL als Detektormaterial verwendet. Eine Verbesserung der Empfindlichkeit des Dosimeters könnte CR 39 als Detektormaterial ergeben, wenn dessen Qualität verbessert wird.



Abb. 3.1 Form geätzter Kernspuren nach verschiedenen Ätzzeiten

3.2.2 Elektrochemisches Ätzverfahren

Durch Anlegen eines elektrischen Wechselfeldes während des Ätzvorganges wird es möglich, die Kernspuren weiter so zu vergrößern, daß diese ohne optische Hilfsmittel mit dem Auge zu sehen sind /To 70/. Ein derartiges elektrochemisches Ätzverfahren ist von Vorteil, wenn eine begrenzte Anzahl von Kernspuren auf einer größeren Fläche auszuwerten ist. Bei chemisch geätzten Kernspuren ist es nötig, mehrere Teilflächen im Mikroskop bei Vergrößerungen bis zu 500fach und mehr auszuwerten. Ein elektrochemisches Ätzverfahren ist jedoch im Gegensatz zum chemischen Ätzverfahren auf Spurendichten bis 3 000 Kernspuren pro cm² begrenzt. Bei höher bestrahlten Detektoren kommt es durch Überlappungen von Kernspuren zu einem Sättigungseffekt.

Elektrochemische Ätzverfahren werden derzeit überwiegend zum Nachweis von α -Teilchen und neutroneninduzierten Rückstoßkernen eingesetzt. Da bei der Verwendung eines Kernspurdetektors zur Messung der Radon- bzw. Thoronkonzentration in Häusern und im Freien bei Expositionszeiten bis zu einem Jahr nur einige Hundert Kernspuren pro cm² zu erwarten sind, wird ein elektrochemisches Ätzverfahren angewendet.

Der elektrochemische Ätzvorgang wird von einer Reihe von Parametern beeinflußt, wie elektrische Feldstärke, Frequenz, Lösungsmittelzusammensetzung, Temperatur, Art des Detektormaterials, Ätzzeit usw. Tommasino gibt eine Übersicht über die bei einem elektrochemischen Ätzverfahren stattfindenden Vorgänge /To 81/. Durch Eindringen von leitendem Lösungsmittel entlang der Kernspur in das isolierende Detektormaterial verhalten sich die Kernspuren wie elektrisch leitende Nadeln. Die elektrische Feldstärke an der Spitze dieser Nadeln erreicht einige MV/cm im Gegensatz zu kV/cm im übrigen Detektor. Durch molekulare Relaxationsprozesse werden mechanische Spannungen im Bereich einer Kernspur erzeugt. Diese Spannungen verursachen feine Risse, sogenannte 'trees', im Detektormaterial /To 81/. Das Phänomen des "Electrochemical Treeing" ist bislang noch nicht genau geklärt /He 83/. Das Eindringen des Lösungsmittels in diese feinen Risse bewirkt einen verstärkten Ätzvorgang und somit eine Vergrößerung der Kernspuren bis zu 200 µm Durchmesser. Eine weitere Vergrößerung der Kernspur durch längere Ätzzeit ist begrenzt durch die Tiefe der Kernspur bzw. die Dicke des Detektors. Es besteht die Gefahr eines Kurzschlusses durch Durchätzen einer Kernspur.

3.2.3 Ätzapparatur zur Auswertung großer Serien

Das zur Auswertung der Kernspurdetektoren benötigte Ätzsystem besteht aus zwei Komponenten, einem Niederfrequenzgenerator für sinusförmige Wechselspannungen bis 2 000 V_{eff} und 10 kHz sowie einer Ätzzelle. In der Literatur sind mehrere Lösungsvorschläge für Ätzzellen zu finden /To 81/. Diese sind alle für gleichzeitiges Auswerten von wenigen Detektorfolien, meist nur zwei, entwikkelt und damit nicht geeignet für die Auswertung von Großserien.

Ein Vorteil des Dosimeters ist die Einsatzmöglichkeit in großen Serien. Aus diesem Grund wird ein Ätzsystem benötigt, das bei einfacher Handhabung einen hohen Durchsatz von Detektorfolien erlaubt.

Die entwickelte Ätzzelle /Ur 84/ besteht aus zwei Teilen, dem Ätzpaket und dem Rahmen. Zwischen jeweils zwei Platten mit Dichtungen (Abb. 3/2) werden zwei Detektoren eingelegt. Elf Ätzplatten für insgesamt 20 Detektorfolien werden mit einer Spindel zwischen zwei Druckplatten zu einem Ätzpaket zusammengepreßt (Abb. 3/3). Zum Anlegen der Wechselspannung wird das Ätzpaket in einen Rahmen gehängt (Abb. 3/4). Mit Hilfe von Federkontakten sind die einzelnen Elektroden über Schmelzsicherungen mit dem Generator verbunden. Die Sicherungen verhindern im Falle eines Kurzschlusses zwischen zwei Kammern durch Abschalten einer Elektrode den Ausfall des Ätzsystems und damit den Verlust der gesamten 20 Detektoren. In diesem Fall sind nur zwei der Elektrode benachbarte Detektoren verloren. Kurzschlüsse können durch Undichtigkeit, Zerbrechen des Detektors oder Durchätzen einer Kernspur auftreten. Die beobachtete Ausfallrate ist < 1 %. Als Material für die Ätzzellen wird PVC verwendet. Die Dichtungen sind aus weichem PVC, die Elektroden und übrigen Metallteile aus Edelstahl.

Um einen korrekten Verlauf des Ätzvorganges zu gewährleisten, werden bei der Routineauswertung die wichtigsten Parameter Spannung, Strom, Frequenz sowie die Temperaturen im Lösungsmittel und im Elektrolyt kontinuierlich gemessen (Abb.3.5). Zur Messung der Temperaturen werden zwei Pt-100-Meßfühler verwendet. Während die Temperaturen und die Frequenz konstant bleiben, nehmen Strom und Spannung leicht zu. Dies wird verursacht durch eine Änderung der Kapazität der Ätzzelle während des Ätzvorgangs durch die ständig wachsenden Kernspuren. Die Ausgangsspannung des Ätzgenerators ist leider nicht stabilisiert.



Abb. 3.2 Schnitt durch Ätzplatte



Abb. 3.3 Schnitt durch Ätzpaket





Abb. 3.4 Ätzpaket im Rahmen



Abb. 3.5 Zeitlicher Verlauf der bei der elektrochemischen Ätzung wichtigen Parameter Spannung, Strom, Frequenz und Temperatur während des Ätzvorganges

,

3.3 Konstruktion des Karlsruher passiven Radondosimeters

Das entwickelte Dosimeter /Ur 81/ verwendet einen Kernspurdetektor zum Nachweis der α -Teilchen von Radon und seinen Zerfallsprodukten. Ein Foto des Dosimeters und ein Querschnitt sind in den Abb. 3.6 und 3.7 angegeben.

Die durch ein hydrophobes Glasfaserfilter abgeschlossene Diffusionskammer enthält am Boden einen Kernspurdetektor. Eine spezielle Abdeckung des Filters verhindert eine mechanische Zerstörung. Das Filter verhindert ein Eindringen von Radonzerfallsprodukten und anderen Aerosolen in die Kammer. Das Filter wird durch eine Halterung vom Deckel gegen die Kammer gedrückt. Die einzelnen Teile sind als Spritzgußteile aus Luran S, BASF Ludwigshafen, gefertigt.

Ein großer Vorteil einer geschlossenen Diffusionskammer gegenüber einer offenen Kammer ist die bessere Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse. Es wurden gleichzeitig in einem Raum mehrere offene und geschlossene Dosimeter exponiert. Die Ergebnisse sind in Tab. 3.2 angegeben. Die Streuung der Ergebnisse ist für offene Dosimeter um den Faktor 4 größer. Ein weiterer Vorteil ist die eindeutig definierte Meßgröße, die Radonkonzentration.



Abb. 3.6 Radondiffusionskammer bestehend aus der Kammer, Filterhalterung, Deckel, Filter und Detektor



Abb. 3.7 Querschnitt der Karlsruher Diffusionskammer

Tab. 3.3 Unterschiede in der Spurendichte von Diffusionskammer und offener Kammer bei gleichzeitiger Exposition in einem Wohnraum über 3 Monate

| Detektor Nummer | Diffusionskammer Sp/cm² | Detektor Nummer | offene Kammer Sp/cm² |
|--------------------|----------------------------|--------------------|-------------------------|
| | | | |
| 1 | 154 | 7 | 1662 |
| 2 | 188 | 8 | 533 |
| 3 | 153 | 9 | 841 |
| 4 | 179 | 10 | 842 |
| 5 | 173 | 11 | 963 |
| 6 | 156 | 12 | 939 |
| MW <u>+</u> 1 σ | 167 <u>+</u> 15 | | 963 <u>+</u> 375 |

3.3.1 Detektorauswahl

Kernspurdetektoren die für Radon-Dosimeter verwendet werden können, sind hauptsächlich Zellulosenitratfolien (LR 115, CN 80) sowie Polykarbonatfolien (MAKROFOL, LEXAN, CR 39). Diese Detektoren sind unempfindlich für β - und γ -Strahlung. Innerhalb eines Meßvergleiches wurden die Eigenschaften verschiedener Kernspurdetektoren untersucht /Pi 81/. Dabei wurden folgende Detektormaterialien verwendet:

- LR 115 (KODAK PATHE, Frankreich), ist ein rot gefärbtes Zellulosenitrat von 13 µm Dicke auf einem Polyesterträger. Die geätzten Spuren erscheinen als helle Punkte auf dunkelrotem Untergrund, Auswertung im Mikroskop.
- CR 39 (PERSHORE, England),
 ist eine Allyldiglykolkarbonatfolie, ca. 300 µm dick.
 Konventionell geätzte Detektoren werden im Mikroskop,
 elektrochemisch geätzte im Mikrofichelesegerät ausgewertet.
- MAKROFOL

ist eine Polykarbonatfolie, 300 μm dick, wird elektrochemisch geätzt und im Mikrofichelesegerät ausgewertet.

Diese Detektoren werden nach Bestrahlung teils konventionell, teils elektrochemisch geätzt. Die hierbei angewandten Ätztechniken sowie die erzielten Kernspurdurchmesser sind in Tab. 3.4 zusammengestellt.

Wird vor dem elektrochemischen Ätzvorgang ein chemischer Ätzschritt ausgeführt, erreicht man eine beträchtliche Reduzierung der Untergrundspuren /Ha 78/. Dieser Vorätzgang entfernt eine bestimmte Schichtdicke gleichmäßig von der Oberfläche des Detektors. Dadurch wird verhindert, daß kleine Oberflächenbeschädigungen beim elektrochemischen Ätzvorgang Spuren ergeben, die nicht von Kernspuren zu unterscheiden sind. Gegenüber einem reinen elektrochemischen Ätzschritt wird so das Signal-Rausch-Verhältnis erheblich verbessert.

Gleichzeitig kann durch diesen Vorätzschritt der ausgewertete α-Energiebereich zu höheren Energien verschoben werden /Ha 79/. Die abgeätzte Schichtdicke und damit der erfaßte Energiebereich hängen ab von der Zusammensetzung des Lösungsmittel, der Temperatur und der Vorätzzeit. In Tab. 3.5 werden die gemessenen Oberflächengeschwindigkeiten v_B für verschiedene Lösungsmittelzusammensetzungen und verschiedene Temperaturen angegeben /Ur 84/. Das Mischungsverhältnis KOH:C₂H₅OH = 80:20 weist die kleinste Oberflächenätzgeschwindigkeit v_B auf.

Das relative Ansprechvermögen der Kernspurdetektoren wurde in Abhängigkeit von der α -Energie untersucht (Abb. 3.8). Für diese Meßergebnisse wurden die Detektorfolien in unterschiedlichen Abständen von einer Am-Quelle exponiert. Die Meßergebnisse zeigen für LR 115 einen relativ kleinen Energiebereich und eine untere Energieschwelle, die sich daraus ergibt, daß die dünnschichtige rot gefärbte Zellulosenitratfolie durchgeätzt wird. Der nachweisbare α -Energiebereich beträgt bei MAKROFOL bis zu 2,8 MeV, bei CR 39 bis zu 3,5 MeV.

Die Ergebnisse des Vergleichs sind in Tab. 3.6 zusammengestellt, Unterschiede in der Empfindlichkeit zwischen MAKROFOL und CR 39 werden durch die unterschiedlichen Kernspurdurchmesser wieder ausgeglichen, so daß sich für beide Detektoren eine vergleichbare untere Nachweisgrenze ergibt. Trotz der hohen Empfindlichkeit von CR 39 wird die untere Nachweisgrenze durch die relativ hohe Schwankung der Untergrund-Spurenzahl bestimmt.

Zur Durchführung der Erhebungsmessungen wurde MAKROFOL als Detektormaterial ausgewählt. Die Entscheidung für MAKROFOL als Detektormaterial beruht auf folgenden Auswahlkriterien:

- gute Reproduzierbarkeit der Messung bei ausreichender Empfindlichkeit,
- kein Fading bis zu Temperaturen von 50 °C und 90 % relativer Feuchte,
- relativ einfache Handhabung insbesondere mechanische Stabilität der Folie im Hinblick auf das Ausstanzen von großen Stückzahlen,
- bei elektrochemischer Ätzung Vergrößerung der Kernspuren bis 150 µm und damit relativ einfaches Auszählen der Kernspuren bei kleiner Vergrößerung ohne Mikroskop.

| DETEKTOR- ART | ATZTECH Konventionell | NIK Elektrochemisch | SPUREN Ø μm | GESICHTS- FELD cm ² | VER- GRÖßE- RUNG |
|------------------|--|--|-------------------|--------------------------------------|------------------------|
| LR 115 | 10 % NAOH 60 °C, 2 h | _ | 8 | 0,02 | 400x |
| CR 39 | 90 % 6N KOH 10 % C ₂ H ₅ OH 20 °C, 3 h | _ | 10 | 0,02 | 400x |
| CR 39 | 90 % 6N KOH + 20 °C, 30 min | 10 % C ₂ H 5 OH 20 °C, 3 h 600 V _{eff} , 5 kHz | 50 | 0,5 | 40x |
| MAKROFOL | 80 % 6N KOH + 20 °C, 1 h | 20 % C ₂ H ₅ OH 20 °C, 3h | 120 | 1,0 | 20x |

Tab. 3.4 Angewandte Ätztechnik

Tab. 3.5 Gemessene Oberflächenätzgeschwindigkeit v von MAKROFOL bei verschiedenen Temperaturen und Lösungsmittelmischungsverhältnissen

| Temperatur °C | Mischungsver 6 N KOH : C ₂ | Mischungsverhältnis des Lösungsmittels 6 N KOH : C ₂ H ₅ OH in Vol. % | | | | |
|------------------|--|--|---------|--|--|--|
| | 80 : 20 | 50 : 50 | 20 : 80 | | | |
| 20 | 1 μm/h | 2 μm/h | 3 µm/h | | | |
| 35 | 2,5 μm/h | 5 µm/h | 9 µm/h | | | |
| 50 | 7 μm/h | 9 μm/h | 14 μm/h | | | |
| | | | | | | |

| | DETEKTOR ART 1) | | | | |
|--|-----------------------|------------------------------|----------------|----------------|--|
| | LR 115 konv. | CR konv. | 39 EC | MAKROFOL EC | |
| UNTERGRUND N | | | | | |
| Spuren/cm² 1 SWert | 20 13,8 | 309 133 | 58,7 48,8 | 12,9 4,9 | |
| 1 S-Wert (%) | 69 | 43 | 83 | 83 | |
| RADONANSPRECHVERMÖGEN | | | | | |
| [€] Rn³) | | | | | |
| <u>Spuren/cm²</u> Bqm ⁻³ d | 38 | 200 | 45 | 16.2 | |
| 1 S _r -Wert | 0,15 | 1,8 | 1,66 | 0,6 | |
| 1 SWert (%) | 11 | 24 | 12,6 | 8 | |
| α-ANSPRECHVERMÖGEN | | | | | |
| [€] max²) | | | | | |
| Spuren x 10 ⁻² | 10,72 | - | 1,47 | 1,47 | |
| $\epsilon_{\rm Rn}/\epsilon_{\rm max}$ | 0,16 | - | _ | 0,41 | |
| α -ENERGIEBEREICH | | | | | |
| \mathbf{E}_{α} in MeV | 1,5-3,8 | 0,1-104) | 0,5-3,4 | 0,5-2,8 | |
| UNTERE NACHWEISGRENZE ³ |) | | | | |
| Spuren/Gesichtsfeld in cm² Bqm ⁻³ d | 6/0 , 2 750 | 2/5•10 3 9250 | 3/0,04 1750 | 10 /1 630 | |

Eigenschaften von Kernspurdetektoren für die Messungen Tab. 3.6 von Radon in der Karlsruher Diffusionskammer

1) Kernspurdetektoren, LR 115 und CR 39 konventionell geätzt, CR 39 und Makrofol vorgeätzt und elektrochemisch geätzt

²) Relatives Ansprechvermögen für α-Energien von 3 MeV (LR 115) und 2 MeV (CR 39 und Makrofol)

3) für Radon und Zerfallsprodukte in der Karlsruher Diffusionskammer und eine relative Standardabweichung von 50 % *) nach Benton et.al., Int. Conf. of Solid State Nuclear Track Detector,

Lyon 1980







3.3.2 Zählen von Kernspuren

Die elektrochemisch geätzten Kernspuren können prinzipiell manuell oder automatisch ausgewertet werden. Bei der manuellen Auswertung wird vom Kernspurdetektor mit Hilfe eines Mikrofilmlesegerätes bei 20facher Vergrößerung eine Kopie angefertigt. Auf dieser Kopie werden die Kernspuren manuell gezählt. In Abb. 3.9 ist ein Ausschnitt von einer Kopie in Orginalgröße dargestellt.

Zur automatischen Auswertung von Kernspuren wurde probeweise ein Zellkolonien-Auszählgerät eingesetzt. Abb. 3.10 zeigt den Unterschied zwischen einer Kernspurauszählung mit dem Microfichelesegerät und dem Zellkolonie-Auszählgerät. Die Auszählung der Kernspuren bezogen sich beim automatischen Zellkolonie-Auszählgerät (AZA) jeweils auf eine Detektorfläche von 1 cm², 3 cm² und 5 cm². Bei geringen Spurendichten ist die Meßunsicherheit bei automatischer Auszählung relativ groß (Faktor 2). Erst oberhalb 100 Spuren/cm² können befriedigende Meßergebnisse erwartet werden. Bei der Auszählung im Zellkolonie-Auszählgerät fällt erschwerend ins Gewicht, daß die in der Transparenz unterschiedlichen Makrofoldetektoren einer Charge während der Auszählung im Wasser liegen müssen. Aus diesem Grund wurden die Detektorfolien bei den Erhebungsmessungen manuell mit Hilfe von Studenten ausgewertet.

Aus geometrischen Gründen liegt auf dem Detektor keine homogene Spurendichte über die gesamte Fläche vor. In der Mitte der Folie zeigt die Spurendichte ein Maximum. Um diesen Effekt zu unterdrücken wurde ein Raster von je 8 mm² über einen im Dosimeter bestrahlten Detektor gelegt und ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.11 dargestellt. Aus diesem Grund muß bei der Auswertung der Detektoren immer das gleiche Meßfeld ausgewertet werden. Bei einer Auswertung von einem konzentrischen Meßfeld von 0,25 cm² wird die Radonkonzentration um 10 % überschätzt, bei einem Meßfeld von 3 cm² um 10 % unterschätzt, jeweils bezogen auf ein zentrisches Meßfeld von 1 cm².



Abb. 3.9 Orginal-Bildkopie von α-Kernspuren in MAKROFOL bei 20facher Vergrößerung



Abb. 3.10 Vergleich von manuell gezählten und automatisch gemessenen Kernspuren in elektrochemisch geätzten MAKROFOL-Detektoren (automatisches Zellkolonie-Auszählgerät)



Abb. 3.11 Inhomogene Verteilung der Flächendichte der Kernspuren über den Detektor, ermittelt durch Auswerten von 8 mm² großen Teilflächen entlang des Foliendurchmessers

3.4 Bestimmung der Radonexposition und der Meßunsicherheit

3.4.1 Radonexposition

Gemessen werden soll die über die Meßzeit T integrierte Radon-konzentration \textbf{X}_{Rn}

$$X_{Rn} = I_{O}^{T} c(t) dt$$

dabei ist c(t): Radonkonzentration zur Zeit t
 T : Expositionszeit

Als Meßwert liefert das Dosimeter die der Radonexposition proportionale Anzahl von Kernspuren N pro Detektorfläche A. Proportionalitätsfaktor ist die Empfindlichkeit Eps des Dosimeters. Nimmt man einen linearen Zusammenhang zwischen Radonexposition und Spurendichte auf dem Detektor an, so erhält man

$$\varepsilon = (N/A - N_0/A_0) / X_{Rn}$$

Dabéi ist N_o : Anzahl nicht strahleninduzierter Kernspuren, Nulleffekt A_o : ausgewertete Detektorfläche

Aus mehreren Kalibrierungen wurde die folgende Empfindlichkeit ermittelt:

$$\varepsilon$$
 = 16,2 Spuren/cm² pro kBqm⁻³ d

Bei der Auswertung eines Dosimeters wird die über die Expositionszeit T integrierte, mittlere Radonkonzentration CRN durch Division der Nettospurendichte durch die Empfindlichkeit und die Expositionszeit ermittelt.

$$C_{Rn} = (N/A - N_O/A_O) / \epsilon / T$$

In Abb. 4.12 sind als Beispiel die Ergebnisse von einigen Kalibrierungen gegenübergestellt. Neben den angegebenen Kalibrierungen beim BGA Neuherberg, EML New York (USA), NRPB Didcot (England) wurden mehrere Vergleiche mit der EIR Würenlingen (Schweiz), der Universität Groningen (Niederlande)sowie der Universität Gent (Belgien), die das gleiche Radondosimeter verwenden, durchgeführt. Dabei wurden die Kalibrierungen bestätigt.



Abb. 3.12 Kalibrierung des Radondosimeters

3.4.2 Meßunsicherheit

Beim Auszählen von Kernspuren wird allgemein der statistische Zählfehler als Meßunsicherheit angesehen. Es hat sich jedoch gezeigt, daß bei der Bestimmung der relativen statistischen Meßunsicherheit vor allem Fehlereinflüsse zu berücksichtigen sind, die sich aus der Qualität der Detektorcharge, der angewandten Ätzmethode und den Ätzbedingungen ergeben. Dies sind im unteren Meßbereich die Streuung der Untergrundspurenzahl sowie bei hoher Kernspurendichte die Streuung des Ansprechvermögens bzw. der Meßwertanzeige innerhalb einer Charge. Die relative statistische Meßunsicherheit der Kernspurzählung ergibt sich demnach zu

$$s(N) = (N + N_{2} + S_{2}^{2} + si^{2} \cdot N^{2})^{(1/2)} \cdot 100 / N$$

Dabei sind:

- N_o, N + N_o: Anzahl von Kernspuren von unbestrahlten und von bestrahlten Kernspurdetektoren (statistischer Zählfehler)
 - S_o: gemessene Standardabweichung der Untergrundspurenzahl N_o verursacht durch die Chargenqualität
 - si: relative Standardabweichung verursacht durch die Streuung der Detektorempfindlichkeit sowie durch Einflüsse des Ätz- und Auswerteverfahrens und der Kalibrierung

Die relative Standardabweichung läßt sich als Funktion der Kernspurenzahl bzw. bei Radondosimetern als Funktion der Radonbestrahlung experimentell ermitteln,wenn beispielsweise jeweils 10 unbestrahlte und 10 ausreichend hoch bestrahlte Detektoren ausgewertet werden. Mit Hilfe der obigen Gleichung kann die relative Standardabweichung als Funktion der Kernspuranzahl bestimmt werden.

Abb. 3.13 zeigt die relative Standardabweichung der untersuchten Kernspurdetektoren LR 115, CR 39 und MAKROFOL (vgl. 3.4), die innerhalb der Diffusionskammer in einer vorgegebenen Radonatmosphäre exponiert wurden. Es wird deutlich, daß der statistische Zählfehler (N) $^{1/2}$ durch andere Meßunsicherheiten überdeckt wird, die insbesondere von der Chargenqualität bestimmt werden. Die zu erwartende Meßunsicherheit wird daher im allgemeinen größer sein als der statistische Zählfehler.

Eine weitere Unsicherheit bei der Bestimmung der Radonexpositionszeit ist die Querempfindlichkeit der Diffusionskammer für Thoron. Die Diffusionskammer ist prinzipiell empfindlich für alle gasförmigen α -Strahler, sofern diese in das Kammerinnere gelangen,



Abb. 3.13 Relative Standardabweichung für MAKROFOL, LR 115 und CR 39 Kernspurdetektoren in Abhängigkeit von der Radonexposition im Vergleich zum statistischen Zählfehler

also auch für Thoron. Wegen der sehr viel kürzeren Halbwertszeit und dem damit verbundenen weit größeren Konzentrationsgefälle zwischen Dosimeterinnerem und Umgebung im Vergleich zu Radon und wegen der unterschiedlich auftretenden a -Energien beträgt die Thoronempfindlichkeit nur ca. 7 % der Empfindlichkeit für Radon. Das Auswerteverfahren wurde für Radon optimiert.

3.4.3 Reproduzierbarkeit der Messungen

Die Reproduzierbarkeit der Dosimeterergebnisse wurde für verschiedene Expositionsbedingungen getestet. Es wurden jeweils 10 Dosimeter gleichzeitig in Häusern, im Freien und bei Kalibrierungen bestrahlt. Die ermittelten Standardabweichungen sind in Abb. 3.14 zusammen mit der theoretisch zu erwartenden Meßunsicherheit (vgl. 3.6.2) angegeben. Wie auf Grund des statistischen Fehlers und der Streuung des Nulleffekts zu erwarten, ist die Reproduzierbarkeit bei kleinen Radonexpositionen relativ schlecht. Bei mittleren Expositionen ist diese annähernd vergleichbar mit dem statistischen Zählfehler, bei hohen Expositionen erreicht diese einen unteren Sättigungswert. Die Streuung wird nicht wie von der Zählstatistik zu erwarten immer besser, was bei der Ermittlung der Meßunsicherheit berücksichtigt wird.



Abb. 3.14 Berechnete relative Standardabweichung für MAKROFOL-Kernspurdetektoren als Funktion der Radonexposition im Vergleich mit gemessenen Werten

3.4.4 Fadingverhalten der Kernspurdetektoren

Nichtgeätzte Kernspuren in nicht photographischen Kernspurdetektoren sind relativ stabil gegenüber Einflüssen von Feuchtigkeit und Temperatur. Temperaturbedingtes Fading kann jedoch je nach Auswerteverfahren verschieden sein. Konventionell geätzte MAKRO-FOL-Detektoren zeigen bei Lagerung bis zu drei Jahren bei Zimmertemperatur kein Fading im Gegensatz zu Zellulosenitratdetektoren /Sa 74/.

Es wurde eine Versuchsserie bei 5°C, 20°C, 35°C und 50 °C und bei relativen Luftfeuchten von 0 %, 50 % und 95 % über einen Zeitraum von 40 Tagen durchgeführt /Ur 83/. Die Detektoren wurden mit α -Teilchen und mit Neutronen bestrahlt. Die Bestrahlungen wurden zu unterschiedlichen Zeiten durchgeführt. Am Ende wurden alle Detektoren gleichzeitig ausgewertet.

Unter Berücksichtigung von statistischen Fehlern und systematischen Meßunsicherheiten zeigt elektrochemisch geätztes MAKROfol E kein Fading. Dies gilt für den gesamten Bereich von 5°C, 0 % r.F. bis 50°C und 95 % r.F. Als Beispiel ist in Abb. 4.15 der Einfluß unterschiedlicher Luftfeuchten bei 50 °C dargestellt. Es sind dabei jeweils der Mittelwert und die Streuung von drei Detektoren für jeden Meßpunkt angegeben, jeweils bezogen auf die Referenzdetektoren. Die Streuung der Referenzdetektoren betrug für α -Teilchen ca. 7 %. Für die übrigen Bedingungen wurden ähnliche Ergebnisse ermittelt.



Abb. 3.15 Fading von α-Teilchenspuren in elektrochemisch geätztem MAKROFOL Detektor für verschiedene relative Feuchtigkeiten bei 50 °C

4. Ergebnisse einer kleinen Serie von Punktmessungen sowie einer Pilotstudie mit passiven Radondosimetern

Im Sommer 1979 wurden Messungen der Momentanwerte der Radon- und Thoronzerfallsproduktkonzentration vorwiegend in zwei sich geologisch unterscheidenden Gebieten durchgeführt, im Kraichgau (Boden: Lehm, Löß, Kalk) und im nördlichen Schwarzwald (Boden: Buntsandstein, Granit). Die Einzelkonzentrationen aus Radon- bzw. Thoron-Zerfallsprodukten wurden zur potentiellen Alphaenergiekonzentration zusammengefaßt und in Abb. 4.1.a und 4.1.b jeweils in einer Häufigkeitsverteilung dargestellt. Die Verteilungen sind sehr unsymmetrisch, lassen sich jedoch durch eine logarithmische Normalverteilung beschreiben. Als Medianwert und geometrische Standardabweichung $\sigma_{\rm g}$ wurden für beide Gebiete

| | Median-Wert | σg | |
|-------------------------|-------------------------|-----|--|
| Radon-Zerfallsprodukte | 1,7 10 ⁻³ WL | 3,1 | |
| Thoron-Zerfallsprodukte | $1,5 10^{-3}$ WL | 2 | |

ermittelt für Lehm, Löß, Kalk

| | Median-Wert | αg |
|-------------------------|-------------------------|-----|
| Radon-Zerfallsprodukte | 2,1 10 ⁻³ WL | 2,7 |
| Thoron-Zerfallsprodukte | 1,3 10 ⁻³ WL | 2,7 |

und für Buntsandstein, Granit

| | Median-Wert | σg |
|-------------------------|-------------------------|-----|
| Radon-Zerfallsprodukte | 1,3 10 ⁻³ ₩L | 3,4 |
| Thoron-Zerfallsprodukte | 1,7 10 ⁻³ WL | 1,3 |

Ein wichtiges Ergebnis dieser kleinen Meßreihe ist der Anteil von Thoronzerfallsprodukten. In Abb. 4.2 ist das Verhältnis von Radon- zu Thoronzerfallsprodukten angegeben. In einem nicht vernachlässigbaren Teil der gemessenen Wohnhäuser übersteigt der Anteil der Thoronzerfallsprodukte den der Radonzerfallsprodukte bis zum Faktor 2. Soll eine Abschätzung der Dosis der Bewohner durchgeführt werden, kann der Anteil verursacht durch Thoronzerfallsprodukte nicht vernachlässigt werden. Vergleicht man das Verhältnis der Medianwerte der Radon- zu Thoronfolgeproduktkonzentrationen in den Gebieten, 1,6 bei Lehm, Löß, Kalk bzw. 0,72 bei

Buntsandstein, Granit, so scheint die Bodenbeschaffenheit eine Ursache für Schwankungen zu sein, eine weitere wäre durch Bodenbeschaffenheit bedingte regional verschiedene Baustoffe.

Tab. 4.1 Zuordnung der Meßwerte zum jeweiligen Baumaterial der Wände

| Minimum | | Med | Medianwert | | | Maximum | |
|---------------------|---|---|--|--|---|--|--|
| Radon | Thoron | Rado | on | Thoro | n | Radon | Thoron |
| 10 ⁻³ WL | 10 ⁻³ ₩L | 10 ⁻³ W3 | ζαđ | 10 ⁻³ WJ | ^{Γ σ} g | 10 ⁻³ WL | 10 ⁻³ WL |
| 0,4 | 0,05 | 1,2 | 2,7 | 1,1 | 2,1 | 12,7 | 4,1 |
| 0,4 | 0,9 | 2,0 | 2,4 | 1,8 | 2,4 | 8,1 | 12,5 |
| 0,4 | 0,1 | 1,4 | 2,5 | 1,0 | 3,0 | 8,5 | 13,1 |
| 0,7 | 0,2 | 2,8 | 4,0 | 1,3 | 4,0 | 24,2 | 10,2 |
| - | - | - | - | - | - | - | _ |
| - | - | - | | - | | - | - |
| 0,7 | 0,9 | 11,1 | 8,7 | 3,3 | 2,5 | 21,3 | 14,1 |
| | Minim Radon 10 ⁻³ WL 20,4 0,4 0,4 0,7 - - 0,7 | Minimum Radon Thoron 10 ⁻³ WL 10 ⁻³ WL 2 2 0,4 0,05 0,4 0,1 0,7 0,2 - - 0,7 0,9 0,7 0,9 | Minimum Mee Radon Thoron Rador 10 ⁻³ WL 10 ⁻³ WL 10 ⁻³ WL 0,4 0,05 1,2 0,4 0,9 2,0 0,4 0,1 1,4 0,7 0,2 2,8 - - - 0,7 0,9 11,1 | Minimum Medianw Radon Thoron Radon 10 ⁻³ WL 10 ⁻³ WL σg σg ∞ 0,05 1,2 2,7 0,4 0,9 2,0 2,4 0,4 0,1 1,4 2,5 0,7 0,2 2,8 4,0 - - - - 0,7 0,9 11,1 8,7 | Minimum Medianwert Radon Thoron Radon Thoron 10^{-3} WL 10^{-3} WL 0^{-3} WL σ_g 10^{-3} WL $0,4$ $0,05$ $1,2$ $2,7$ $1,1$ $0,4$ $0,9$ $2,0$ $2,4$ $1,8$ $0,4$ $0,1$ $1,4$ $2,5$ $1,0$ $0,7$ $0,2$ $2,8$ $4,0$ $1,3$ $ 0,7$ $0,9$ $11,1$ $8,7$ $3,3$ | MinimumMedianwertRadonThoronRadonThoron 10^{-3} WL 10^{-3} WL 0^{-3} WL σ_g $0,4$ $0,05$ $1,2$ $2,7$ $1,1$ $2,1$ $0,4$ $0,9$ $2,0$ $2,4$ $1,8$ $2,4$ $0,4$ $0,1$ $1,4$ $2,5$ $1,0$ $3,0$ $0,7$ $0,2$ $2,8$ $4,0$ $1,3$ $4,0$ $ 0,7$ $0,9$ $11,1$ $8,7$ $3,3$ $2,5$ | MinimumMedianwertMaximumRadonThoronRadonThoronRadon 10^{-3} WL 10^{-3} WL 10^{-3} WL σ_g 10^{-3} WL σ_g $0,4$ $0,05$ $1,2$ $2,7$ $1,1$ $2,1$ $12,7$ $0,4$ $0,9$ $2,0$ $2,4$ $1,8$ $2,4$ $8,1$ $0,4$ $0,1$ $1,4$ $2,5$ $1,0$ $3,0$ $8,5$ $0,7$ $0,2$ $2,8$ $4,0$ $1,3$ $4,0$ $24,2$ $ 0,7$ $0,9$ $11,1$ $8,7$ $3,3$ $2,5$ $21,3$ |

Keine Angaben für Mittelwert, wenn weniger als 10 Messungen.

Tab. 4.2 Zuordnung der Meßwerte zur jeweiligen geologischen Bodenbeschaffenheit

| | Minimum | | Mi | Mittelwert | | | Maximum | |
|--------------------------|---------------------|---------------------|--------------------|------------|---------------------|-----|---------------------|---------------------|
| | Radon | Thoron | Rade | on | Thore | on | Radon | Thoron |
| | 10 ⁻³ WL | 10 ⁻³ WL | 10 ⁻³ W | Γαg | 10 ⁻³ W. | Ĺσg | 10 ⁻³ WL | 10 ⁻³ WL |
| Gesamte Meßreihe | 0,4 | 0,2 | 1,7 | 3,1 | 1,5 | 2,0 | 24,2 | 14,1 |
| Lehm, Löß, Kalk | 0,6 | 0,55 | 2,1 | 2,7 | 1,3 | 2,7 | 21,3 | 14,1 |
| Buntsandstein, Granit | 0,4 | 0,2 | 1,3 | 3,4 | 1,7 | 1,3 | 14,6 | 13,1 |



Abb. 4.1 Häufigkeitsverteilung der potentiellen α-Energiekonzentration von Radon (a) und Thoron (b), gemessen mit einer aktiven Filtertechnik und einer passiven Diffusionskammer in Wohnhäusern und im Freien (vgl. Kap. 5)

In der Zeit von November 1979 bis März 1980 wurde eine Pilotstudie mit passiven Radondosimetern durchgeführt. Dabei wurde in ca. 100 Wohnungen in und um Karlsruhe über einen Zeitraum von jeweils 3 Monaten gemessen. Die Verteilung der ermittelten mittleren Radonkonzentrationen ist in Abb. 4.1.a angegeben. Die Konzentrationen schwanken im Bereich von 8-170 Bq/m³ mit einem Medianwert von 40 Bq/m³.





5. Durchführung der Radon-Erhebungsmessungen

5.1 Auswahlkriterien

Zur Ermittlung der Höhe und der Schwankungsbreite der Radonkonzentration in Häusern ist es notwendig, eine repräsentative Stichprobe zu untersuchen, da nicht alle in der Bundesrepublik Deutschland existierenden Wohnungen ausgemessen werden können.

Da nach den Erfahrungen in Zusammenhang mit den Erhebungsmessungen

zur externen Strahlenexposition mit einer starken regionalen Streuung zu rechnen war, sollte zugleich eine "flächendeckende" Verteilung der Radondosimeter vorgenommen werden. Zusätzlich wurde angestrebt, in jedem Kreis mindestens 5 Wohnungen zu erfassen.

Im Arbeitskreis "Radonmessungen" des Ausschusses "Strahlenschutztechnik" bei der Strahlenschutzkommission wurde daher vereinbart, mindestens 5000 Wohnungen unter Berücksichtigung der Bevölkerungsdichte auszumessen. Auf der Basis eines Wohnungsbestandes von etwa 25 Millionen (St 79) heißt dies, daß etwa jede 5000. Wohnung erfaßt wird. Die Quoten für die jeweiligen Bundesländer sind in Tab. 5.1 angegeben.

Die Radonmessungen im Freien wurden in Zusammenhang mit dem Deutschen Wetterdienst durchgeführt. Nähere Einzelheiten dazu sind Abschnitt 6.3 zu entnehmen.

5.2 Organisation der Erhebungsmessungen

Um den hohen Zeitaufwand bei der Auswahl der Wohnungen, der Verteilung und Rücknahme der Dosimeter und der Bearbeitung der Fragebogen zu bewältigen, war die Zusammenarbeit mehrerer regional verteilter Institutionen notwendig. Eine Liste der Einrichtungen, die sich für eine Mitarbeit an diesem Meßprogramm bereiterklärt hatten und die jeweils betreuten Meßgebiete sind in Tab. 5.2 zusammengestellt. Zentrale Aufgaben innerhalb dieses Vorhabens übernahmen die Hauptabteilung Sicherheit des Kernforschungszentrums Karlsruhe (KfK) und das Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes (BGA).

Da die Entwicklung des verwendeten Radondosimeters bereits bei der KfK erfolgte, lag es nahe - auch im Sinne einer Qualitätssicherung der Ergebnisse - alle Messungen des Programms dieser Institution zu übertragen. Wie auch aus dem Organisationsschema (Abb. 5.1) ersichtlich, stellte die KfK den Meßstellen die notwendigen Dosimetergehäuse und die spezifisch numerierten Detektorfolien zur Verfügung. Die Verteilung der Dosimeter erfolgte mit Hilfe öffentlicher Dienststellen, wie z.B. Kreis- und Gemeindeverwaltungen,

| Bundesland | Bestand Ende 1978 in 1000 | Anzahl zu messender Wohnungen | Anzahl tatsächlich gemessener Wohnungen |
|-----------------|---------------------------------|-------------------------------------|---|
| Schleswig- | | | |
| Holstein | 1072 | 215 | 241 |
| Hamburg | 778 | 156 | 160 |
| Niedersachsen | 2809 | 562 | 860 |
| Bremen | 317 | 64 | 41 |
| Nordrhein- | | | |
| Westfalen | 6685 | 1337 | 1360 |
| Hessen | 2240 | 448 | 473 |
| Rheinland- | | | |
| Pfalz | 1449 | 290 | 332 |
| Baden-Württemb. | 3559 | 712 | 916 |
| Bayern | 4269 | 854 | 1198 |
| Saarland | 431 | 87 | 121 |
| Berlin (West) | 1099 | 220 | 268 |
| Bundesgebiet | 24708 | 4945 | 5970 |

Tab. 5.1 Bestand, Zahl der zu messenden und Zahl der tatsächlich gemessenen Wohnungen in der Bundesrepublik Deutschland, nach Bundesländern

| Gruppe | Institution | Projektleiter | Betreutes Gebiet |
|--------|--|--------------------------|------------------------------------|
| 1 | Kernforschungsanlage Jülich Abt. Strahlenschutz- Sicherheit | Dr.H.G. Ehrlich | Nordrhein- Westfalen |
| 2 | Kernforschungszentrum Karlsruhe Hauptabt. Sicherheit | Prof.Dr.H. Kiefer | Baden- Württemberg |
| 3 | GKSS-Forschungszentrum Geesthacht Abt. Strahlenschutz | Dr.K. Henning | Schleswig- Holstein, Hamburg |
| 4 | Isotopenlabor für medi- zinische und biologi- scheForschung der Universität Göttingen | Dr.J. Porsten- dörfer | Niedersachsen, Bremen |
| 5 | Institut für Biophysik Universität des Saar- landes, Homburg/Saar | Dr.G. Keller | Saarland, Rheinland-Pfalz |
| 6 | Institut für Biophysik Universität Gießen | Prof.Dr.W. Lohmann | Hessen |
| 7 | PhysTechn. Bundes- anstalt Braunschweig Abt. 6.6 | Prof.Dr.W.A. Kolb | Niedersachsen, Berlin |
| 8 | Institut für Strahlen- hygiene des Bundes- gesundheitsamtes Neuherberg | Prof.Dr. H. Schmier | Bayern |
| 9 | Staatliches Material- prüfungsamt Nordrhein-Westfalen Dortmund | Dr. Fahland | Nordrhein- Westfalen |

| Tab. | 5.2 | Liste | der | an | dem | Erhebungsprogramm | beteiligten |
|------|-----|--------|------|------|-----|-------------------|-------------|
| | | Instit | utic | oner | r | | |



Abb. 5.1 Organisation der Erhebungsmessungen

Polizei, Schulen etc.

Nach einer Expositionszeit von drei Monaten in den gewählten Haushalten wurde das Detektormaterial in Polyäthylenfolie verschweißt an das KfK zum Ätzen und zur Bestimmung der Spurendichte zurückgeschickt.

Die daraus berechneten Radon-Expositionswerte und Fehlerangaben wurden anschließend den Meßstellen mitgeteilt.

Das BGA übernahm im Rahmen des Programms die zentrale Erfassung der Erhebungsdaten, d.h. die einzelnen Meßstellen sandten die vollständig ausgefüllten Fragebogen (vgl. Abschnitt 5.3) an das BGA. Dort wurden die vorkodierten Daten in die elektronische Datenverarbeitung (EDV) übernommen, geprüft und zum Teil analysiert (Wi 84).

5.3 Fragebogen

Für eine gezielte Analyse der Daten wurden Fragebögen entworfen, um die zu jeder Messung wohnungsrelevanten Angaben zu erhalten. Formblatt 1 (Anhang A3) enthält die wichtigsten Angaben zum Haus bzw. zur Wohnung:

- (1) Statistische Kennziffer der Wohnung (laufende Nummer),5-stellig, davon die 1. Stelle die Gruppennummer
- (2) Gemeinde mit Gemeindekennziffer (8-stellig), nach dem amtlichen Gemeindeverzeichnis der Bundesrepublik Deutschland, Stand November 1981
- (3) Art des Hauses
- (4) Bauweise
- (5) Baujahr
- (6) Angaben zum Keller

Für jede durchgeführte Messung innerhalb von Gebäuden mußte Formblatt 2 ausgefüllt werden (Anhang A3). Folgende Angaben waren notwendig (Angaben zum Raum):

- (1) Kennziffer der Wohnung
- (2) Dosimeter-(Folien-)Nummer
- (3) Expositionszeitraum
- (4) Ergebnis der Messung: Radon-Exposition und Fehlerangabe
- (5) Standplatz des Dosimeters
- (6) Etage
- (7) Heizsystem
- (8) Fenster
- (9) Baumaterial

Der Kodierungsschlüssel zum Baumaterial wurde zur Vereinfachung in den Fragebogen mitaufgenommen.

Als Standplätze für die Dosimeter waren zunächst das Schlafzimmer und das Wohnzimmer (Hauptaufenthaltsraum) vereinbart worden. Später wurde – um den Einfluß des Erdreiches auf die Radonkonzentration in den Häusern zu studieren – der Keller hinzugenommen. Die Aufstellung von Dosimetern in weiteren Räumen war freigestellt.

Für die Messungen im Freien wurde <u>Formblatt 3</u> zusammengestellt (Anhang A3), gewissermaßen eine abgemagerte Kombination aus Formblatt 1 und 2, mit folgenden Angaben:

- (1) Kennziffer des Meßplatzes (laufende Nummer)
- (2) Gemeinde und Gemeindekennziffer (vgl. Formblatt 1)
- (3) Dosimeter-(Folien-)Nummer
- (4) Expositionszeitraum
- (5) Ergebnis der Messung: Radon-Exposition und Fehlerangabe

Die Expositionszeit im Freien betrug in der Regel 1 Jahr. Die Aufstellung erfolgte in Zusammenarbeit mit dem Deutschen Wetterdienst in deren Wetterhütten.

6. Ergebnisse der Erhebungsmessungen

6.1 Ermittlung und Dokumentation der Ergebnisse

Bei der Berechnung der Einzelergebnisse mußte zunächst die jeweilige Radonexposition (in pCi 1⁻¹ d) unter Berücksichtigung des angegebenen Meßzeitintervalls in einen Konzentrationswert umgerechnet werden (pCi/l). Zwischenzeitlich erfolgte die Umstellung auf die neuen SI-Einheiten, so daß alle Radonwerte in diesem Bericht in Bq/m³ angegeben sind.

Für jedes Haus bzw. für jede Wohnung wurde aus den Ergebnissen in den bewohnten Räumen ein arithmetischer Mittelwert der gemessenen Radonkonzentration errechnet.

Sowohl zu allen Einzelmessungen und Wohnungsmittelwerten als auch für die Messungen im Freien wurden im Rechner des Bundesgesundheitsamtes (Siemens, Betriebssystem BS 2000) separate Dateien angelegt, die eine effektive Bearbeitung der Daten mittels fertiger Statistik-Programmpakete gestatteten (Wi 84).

6.2 Ergebnisse der Messungen in Häusern

6.2.1 Statistische Beurteilung der Verteilung der Meßpunkte

Im Rahmen dieser Erhebung wurden insgesamt 20 609 Messungen in 5970 Wohnungen durchgeführt. Die Verteilung der Meßpunkte auf die jeweiligen Bundesländer ist Tab. 5.1 zu entnehmen (vgl. auch Abb. 6.4). Die vorgegebenen Quoten wurden - bis auf Bremen - um 10 - 20 % überschritten.

In jedem Regierungsbezirk wurden - bis auf die Bezirke Trier, Kassel und das Bundesland Bremen - mindestens 100 Wohnungen erfaßt, so daß ein statistischer Vergleich möglich ist. Dieser Vergleich kann auf Kreisebene nicht mehr durchgeführt werden, da die Anzahl gemessener Wohnungen mit im Mittel mit 5 - 50 für diesen Zweck zu klein ist. Etwas überrepräsentiert sind in dieser Hinsicht die Kreise Herzogtum Lauenburg mit 66, Düren mit 103, die Stadt Göttingen mit 65 und die Stadt Braunschweig mit 79 Messungen. In etwa 18 von insgesamt 350 Landkreisen und kreisfreien Städten wurden weniger als 5 Wohnungen ausgemessen.

Eine vollständige Liste der Landkreise mit Anzahl der gemessenen Wohnungen und Kreismittelwerten findet sich im Anhang (A5).

Die Expositionszeit der Dosimeter betrug in der Regel 3 Monate. Eine Übersicht zur jahreszeitlichen Gleichverteilung der Messungen gibt Tab. 6.1. Dabei ist der relative Anteil der in dem angegebenen Monat begonnenen Messungen angegeben.

Tab. 6.1 Anteil der in dem angegebenen Monat jeweils begonnenen Messungen

| Monat | relativer | Anteil | , | 9 |
|-----------|-----------|--------|---|---|
| <u></u> | | | | |
| Januar | 12 | } | | |
| Februar | 9 | 30 | | |
| März | 9 |) | | |
| April | 8 |) | | |
| Mai | 11 | 24 | | |
| Juni | 5 |) | | |
| Juli | 6 |) | | |
| August | 6 | 24 | | |
| September | 12 |) | | |
| Oktober | 8 |) | | |
| November | 5 | 22 | | |
| Dezember | 9 |) | | |
| | | | | |

Damnach liegt dieser monatliche Anteil zwischen 6 % und 12 %, also eine gewisse - wenn auch nicht ideale - Gleichverteilung ist vorhanden. Günstiger erscheint die Verteilung bei einer quartalsmäßigen Betrachtungsweise.

Meßzahl der Wohnungen wurde lediglich für eine dreimonatige Meßperiode beobachtet (66 %), ein Anteil von etwa 7 % wurde länger als ein Jahr und ca. 10 Wohnungen bis zu 3 Jahren hintereinander ausgemessen. Der erfaßte Wohnungsbestand verteilt sich folgendermaßen:

| Einfamilienhäuser | 46 | 8 |
|--------------------------|----|----|
| Zweifamilienhäuser | 22 | 8 |
| Mehrfamilienhäuser | 27 | 00 |
| Bauten über 5 Stockwerke | 4 | 00 |

Diese Häuser sind nach der Bauweise klassifiziert:

| Massivbauten | 91 | 80 |
|------------------------|----|----|
| Fachwerkhäuser | 3 | 90 |
| Leichtbau-Fertighäuser | 4 | 00 |

Über den Kellertyp wurden folgende Angaben gemacht:

| vollunterkellert | 75 | 90 |
|--------------------|----|----|
| teil-unterkellert | 18 | 8 |
| nicht unterkellert | 5 | 00 |

Als Erstellungszeit für die Gebäude wurde angegeben:

| vor 1900 | 6 | 90 |
|-----------|----|----|
| 1901-1948 | 15 | 90 |
| nach 1948 | 79 | 00 |

Die Wohnungen verfügen über folgende Heizsysteme:

| Konvektionsheizung | (Zentral- | | |
|--------------------|-----------|-----|-----|
| - | hzg.) | 74 | 00 |
| Einzelofenheizung | | 11 | 00 |
| Fußbodenheizung | | 5 | olo |
| Nachtspeicherofen | | 3,5 | olo |
| Warmluftheizung | | 3 | 00 |

Die Wohnungen sind mit folgenden Arten von Fenstern ausgestattet:

| Einscheibenfenster | 15 | 8 |
|--------------------|----|----|
| Isolierverglasung | 58 | 00 |
| Doppelfenster | 25 | 90 |
Die Informationen über das Hauptbaumaterial sind - nach Wand, Decke und Fußboden getrennt - in Abb. 6.1 graphisch wiedergegeben.



Fußboden

Abb. 6.1 Prozentsatz erfaßter Wohnungen, aufgeschlüsselt nach dem Hauptbaumaterial von Wand, Decke und Fußboden.

Aus der Darstellung geht hervor, daß eine einheitliche Charakterisierung einer Wohnung sehr schwierig sein dürfte. Der Bezug allein auf das Wandmaterial ist in Zusammenhang mit der Radonfrage sicher nicht ausreichend.

Ob die Stichprobenauswahl hinsichtlich der aufgeführten Merkmale den tatsächlichen Gegebenheiten in der Bundesrepublik entspricht, läßt sich wegen fehlender statistischer Angaben über den Wohnungsbestand nicht überprüfen. Dennoch zeigt ein Vergleich mit einer Repräsentativumfrage über Lüftungsverhältnisse in Wohnungen (Kü 79), daß die gewonnene Stichprobe recht gut die Grundgesamtheit widerspiegelt.

6.2.2 Gesamtverteilung

Die Häufigkeitsverteilung sämtlicher 5970 Wohnungsmittelwerte ist in Abb. 6.2 in Form eines Histogramms dargestellt. Sie ist stark unsymmetrisch und flacht zu höheren Werten hin ab.



Abb. 6.2 Häufigkeitsverteilung der Radon-Wohnungsmittelwerte

Durch eine logarithmische Transformation der Konzentrationswerte lassen sich die Daten recht gut als Normalverteilung behandeln.* Die in Abb. 6.3 gewählte Darstellung der summenhäufigkeit mit logarithmischem Maßstab für die Radonkonzentration eignet sich recht gut für Interpretations- und Vergleichszwecke.

^{*} Einzelheiten zur logarithmischen Normalverteilung siehe Anhang



Abb. 6.3 Summenhäufigkeit der Radon-Wohnungsmittelwerte

Die Verteilung ist charakterisiert durch den Medianwert, der Wert, der die Gesamtheit der Messung in zwei gleichgroße Populationen teilt und durch den Streufaktor σ_g als Maß für die Streuung. Auf der Grundlage der vorhandenen Daten ergibt sich ein Medianwert von 40 Bq/m³ bei einem Streufaktor von 1,8. Oberhalb von 100 Bq/m³ flacht die Verteilung ab, bei einem σ_g von im Mittel 2,9. Aus praktischen Gründen sind daher in Tab. 4.2 verschiedene Fraktile angegeben, die für spätere Grenzwertabschätzungen nützlich sein dürften.

Tab. 6.2 Fraktile für die Summenhäufigkeit der Wohnungsmittelwerte

| Fraktil, % | Radonwert, | Bq∕m³ |
|------------|--|-------|
| | ······································ | |
| 50 | 40 | |
| 85 | 70 | |
| 90 | 80 | |
| 95 | 110 | |
| 99 | 220 | |
| 99,9 | 600 | |

Auffallend ist, daß der ermittelte Medianwert bei den Erhebungsmessungen mit 40 Bqm⁻³ ebenso groß ist wie der Medianwert bei der Pilotstudie (vgl. Kap. 4).

6.2.3 Auswertung nach verschiedenen Gesichtspunkten

Zur Gewinnung weiterer Informationen wurden die Daten nach den in den Erhebungsbögen festgehaltenen Merkmalen aufgeschlüsselt, u.a. regionale Verteilung, Bauweise und Haustyp, Art der Unterkellerung, Alter des Hauses, Fenster, Heizsystem und Baumaterial. Zwischen allen sinnvollen Merkmalsausprägungen wurde mit einem statistischen Test (T-Test) festgestellt, welche Merkmalsunterschiede signifikant sind. Dabei wurde ein Unterschied mit einer statistischen Sicherheit von größer als 95 % als signifikant bezeichnet. Eine Klassifizierung nach kombinierten Merkmalen wurde im Rahmen dieses Berichts nicht vorgenommen.

Bei der Analyse wurde angenommen, daß die Stichprobe weitgehend repräsentativ und innerhalb des betrachteten Merkmals randomisiert ist (zufallsverteilt). Eine kritische Beurteilung der Stichprobe erfolgt in Abschnitt 6.1.

6.2.3.1 Regionale Verteilung

Eine regionale Verteilung der Radon-Wohnungsmittelwerte nach Bundesländern und einigen Großstädten ist aus Abb. 6.4 ersichtlich. Bei der Mehrzahl der Bundesländer liegen die Mittelwerte (Median) zwischen 37 und 43 Bq/m³. Lediglich in Rheinland-Pfalz und in Bayern liegen diese Werte mit 57 bzw. 46 Bq/m³ deutlich über dem Bundesmittel von 40 Bq/m³. Hingegen sind in einer Reihe von Großstädten wie Hamburg, Bremen, Frankfurt, München und Berlin recht niedrige Radonmittelwerte anzutreffen (27-33 Bq/m³).



Abb. 6.4 Radon-Medianwerte in Häusern nach verschiedenen Bundesländern, Frankfurt und München (in Bq/m³). Die Angaben für Bayern und Hessen schließen die Messungen in München bzw. Frankfurt ein

In wieweit die Unterschiede zwischen den Bundesländern signifikant sind, ist in Tab. 6.3 angegeben (T-Test). Dabei sind diejenigen Paarungen, die sich mit einer statistischen Sicherheit von größer 95 % signifikant unterscheiden, mit einem "+" gekennzeichnet, sonst mit einem "-".

Tab. 6.3 Unterschiede zwischen den Bundesländern (95 % Signifikanz-Niveau)



Aufschlußreicher ist die etwas detailliertere Aufgliederung der Daten nach Regierungsbezirken unter dem Einschluß der Stadtstaaten (Abb. 6.4) sowie nach erfaßten Gemeinden (Abb. 6.5). Diese Karten lassen gewisse regionale Unterschiede erkennen, die sich weitgehend an der Geologie der jeweiligen Gebiete orientieren. Diese Beobachtung war bereits bei Erhebungsmessungen zur externen Strahlenexposition gemacht worden (BMI 78).

Die feine Aufschlüsselung der Meßergebnisse nach einzelnen Gemeinden ist nicht unproblematisch. Die Unterschiede zwischen den Mittelwerten einzelner Gemeinden sind wegen der oft geringen Anzahl von Messungen nicht immer statistisch signifikant. Dennoch werden aus dieser Karte Zusammenhänge zwischen der ermittelten Radonkonzentration in Wohnungen und dem geologischen Untergrund deutlich erkennbar.



Abb. 6.5 Radon-Medianwerte in Häusern nach Regierungsbezirken in Bq/m³.

In Klammern: Anzahl erfaßter Wohnungen.



Abb. 6.6 Verteilung der Meßorte über das gesamte Bundesgebiet sowie über einzelne Gemeinden gemittelte Radonkonzentration in Wohnhäusern 6.2.3.2 Haustyp, Bauweise und Art der Unterkellerung

Wichtige Gesichtspunkte für die Beurteilung der Radonkonzentration in einem Haus sind die konstruktiven Merkmale des Gebäudes. Hinsichtlich des Haustyps liegt der Medianwert für die Gruppe der Ein- und Zweifamilienhäuser (Einzelhäuser) mit 43 Bq/m³ deutlich über dem für Mehrfamilien- und Hochhäusern mit 35 bzw. 33 Bq/m³ (Abb. 6.7).





Keine signifikanten Unterschiede bestehen zwischen Ein- und Zweifamilienhäusern einerseits sowie zwischen Mehrfamilien- und Hochhäusern andererseits.

Massivhäuser, die am häufigsten vertretene Bauweise, entprechen in ihrem Medianwert der Radonkonzentration dem der Gesamtverteilung. Bei Fachwerkhäusern liegen diese Werte signifikant höher (50 Bq/m³), bei Leichtbeton-Fertighäusern sehr niedrig (29 Bq/m³) (Abb. 6.8).



Abb. 6.8 Radon-Medianwert klassifiziert nach der Bauweise, in Bq/m³

Der Keller ist entscheidend in seiner Bedeutung als Eintrittspforte für Radon aus dem Erdreich. Wie aus Abb. 6.9 ersichtlich, findet man bei vollständig unterkellerten Häusern mit einem Median von 38 Bq/m³ die niedrigsten Radonwerte. Signifikant erhöhte Radonpegel trifft man an bei Teilunterkellerung und in Häusern ohne Keller (Median: 50 Bq/m³ bzw. 43 Bq/m³).



Abb. 6,9 Radon-Medianwert klassifiziert nach Art der Unterkellerung, in Bq/m³

6.2.3.3 Etage

Zum Vergleich verschiedener Stockwerke wurde der zeitliche Mittelwert aus den jeweiligen Einzelmessungen in verschiedenen Etagen gebildet. Die höchsten Radon-Medianwerte findet man demnach im Keller mit 53 Bq/m³ (Abb. 6.10). Zu höheren Stockwerken nehmen die Konzentrationswerte vom Erdgeschoß (43 Bq/m³) über die 1. Etage (38 Bq/m³) zur 2. Etage hin (33 Bq/m³) signifikant ab. Darüber hinaus bleibt die Radonkonzentration konstant. Zum Vergleich ist der Referenzwert von 14 Bq/m³ im Freien angegeben (Klimahauptstellen des Deutschen Wetterdienstes). Eine ausführliche Diskussion der Messungen im Freien erfolgt in Abschnitt 6.3.



Abb. 6.10 Radonmedianwerte in verschiedenen Stockwerken, in Bq/m³. Grundlage bilden die zeitlichen Etagenmittelwerte aller Einzelmessungen

Geringe Unterschiede findet man bei einer Aufgliederung nach verschiedenen Räumen. Auf der Grundlage der zeitlichen Mittelwerte aller Einzelmessungen liegen die Medianwerte für Schlafzimmer, Küche und Kinderzimmer bei 37 Bq/m³ (Abb. 6.11). Mit 41 Bq/m³ sind die Werte im Wohnzimmer leicht, aber signifikant erhöht. Der Wert für den Keller wurde bereits in Abschnitt 6.2.3.3 mit 52 Bq/m³ angegeben.



Abb. 6.11 Radonmedianwerte in verschiedenen Räumen, auf der Grundlage von zeitlichen Raummittelwerten der jeweiligen Einzelmessungen (in Bq/m³)

6.2.3.5 Alter

Eine Unterscheidung nach dem Baujahr der Häuser (Abb. 6.12) ergibt für die Gruppe "vor 1900" mit 50 Bq/m³ den höchsten Radon-Medianwert. Er unterscheidet sich signifikant von den Werten für die Altersgruppen "1901 - 1948" mit 39 Bq/m³ und "nach 1948" mit 39 Bq/m³ bzw. 40 Bq/m³.



Abb. 6.12 Unterschiede zwischen verschiedenen Altersgruppen, in Bq/m³

6.2.3.6 Heizung und Fenster

Vor Beginn der Erhebungsmessungen wurde angenommen, Art der Heizung und Ausführung der Fenster könnten sich entscheidend auf die Radonkonzentration in Innenräumen auswirken. Eine Analyse aller vorliegenden Daten zeigt jedoch, daß verschiedene Heizsysteme und unterschiedliche Fensterarten keine signifikanten Unterschiede hinsichtlich des Radonpegels zeigen.Gegenüber dem allgemeinen Medianwert von 40 Bq/m³ führen lediglich Einfachfenster ohne zusätzliche Dichtungen zu einer leichten Erniedrigung des Radonpegels (Median: 37 Bq/m³). Beschränkt man die Auswertung auf die in den Wintermonaten gewonnenen Meßwerte, ergibt sich auch kein anderes Bild. Die Einzelergebnisse sind im Anhang (A4) zusammengestellt.

6.2.3.7 Baustoffe

Die Bedeutung verschiedener Baumaterialien des Hauses ist Abb. 6.13 zu entnehmen. Dabei wurde nach dem hauptsächlich verwendeten Baustoff für Wand, Decke und Fußboden unterschieden. Richtet man sich zunächst nach dem Wandmaterial (kreuzschraffiert), erkennt man, daß die höchsten Radonwerte in Lehm- und Natursteinhäusern ermittelt wurden (Medianwerte 57 bzw. 61 Bg/m³).

Auch Bauten aus Bimssteinen liegen mit 47 Bq/m³ noch signifikant über dem Niveau der übrigen Wandmaterialien. Wenig Radon findet man in Holzhäusern (29 Bq/m³) und in Gebäuden, bei denen vorwiegend Gips als Wandbaustoff verwendet wird. Die Radon-Medianwerte für die übrigen Wandmaterialen liegen im Bereich zwischen 37 und 46 Bq/m³.



Abb. 6.13 Einfluß unterschiedlicher Wandmaterialien auf die Radonkonzentration in Innenräumen: (1) Holz, (2) Gips, (3) Kalksandstein, (4) Schlackensteine, (5) Beton, (6) Gasbeton, (7) Ziegel, (8) Bimssteine, (9) Lehm, (10) Naturstein In wieweit die Unterschiede zwischen den Medianwerten der einzelnen Wandbaustoffe signifikant sind, kann man Tab. 6.4 entnehmen.

Tab. 6.4 Statistische Unterschiede zwischen verschiedenen Baumaterialien am Beispiel der Wandbaustoffe (95 % Signifikanzniveau)



Bei der Interpretation der Ergebnisse ist zu berücksichtigten, daß die Radonkonzentration in der Raumluft nicht nur durch das Wandmaterial, sondern auch durch das Baumaterial von Decke und Fußboden bestimmt wird. Orientiert man sich bei der Auswertung der Radonwerte nach dem Hauptbaumaterial von Decke und Fußboden, verschiebt sich das Bild dahingehend, daß die oben aufgeführten Unterschiede weitgehend ausgeglichen werden.

Im übrigen ist eine einheitliche Charakterisierung einer Wohnung nur selten möglich. Auch sind die in den Fragebogen gemachten Angaben zu den Baumaterialien oft fragwürdig.

6.2.3.8 Jahreszeitlicher Gang

Wesentliches Argument für eine dreimonatige Expositionszeit der Dosimeter war die Möglichkeit der Ermittlung jahreszeitlicher Unterschiede. In der Auswertung wurden alle Messungen in bewohnten Räumen monatsweise zusammengefaßt. Da die Standzeit der Dosimeter in der Regel 3 Monate betrug, wurde als Bezugsmonat der Monat in der Mitte der Expositionsperiode gewählt. Das arithmetische Mittel solcher Einzelmonate wurde in Bezug gesetzt zum Jahresmittelwert aller Messungen. Der daraus errechnete jahreszeitliche Verlauf ist in Abb. 6.14 dargestellt.

Man erkennt eine deutliche Abnahme der Radonkonzentration in den Sommermonaten mit einem Anstieg im Oktober und November. Der Maximalwert ist im Dezember erreicht. Auffallend ist der Abfall im Januar, der aus klimatischen Gründen allein nicht erklärbar ist. Eine ähnlich hohe Abnahme der mittleren Radonkonzentration beobachtete auch Fisenne bei Messungen im Freien in den Jahren 1977-1982 in Chester, New Jersey USA (Fi 82). Die Abnahme des fünfjährigen Monatsmittels der Radonkonzentration von Dezember auf Januar beträgt ebenfalls 28 %. Der leichte Anstieg im Juli und August konnte in einzelnen Fällen durch den sogenannten "Urlaubseffekt" erklärt werden (Eh 83). Dabei handelt es sich um die Tatsache, daß während einer längeren Abwesenheit der Bewohner im allgemeinen die Radonkonzentration, weil Fenster und Türen geschlossen bleiben, und so die exponierten Radondosimeter einen höheren Wert anzeigen.



Abb. 6.14 Jahreszeitlicher Gang der Radonkonzentration - relativer Verlauf

6.2.4 Fachwerkhäuser

Bei den Untersuchungen in 6.2 hat sich gezeigt, daß die Gruppe der Fachwerkhäuser im Mittel die höchste Radonkonzentration mit 50 Bq/m³ im Vergleich zu 41 Bq/m³ für Massivhäuser und 29 Bq/m³ bei Leichtbaufertighäusern zeigt. Geht man davon aus, daß die im Mittel höhere Radonkonzentration in Fachwerkhäusern hauptsächlich durch den Erdboden als Quelle verursacht und die Luftaustauschraten zwischen Haus und dem Freien beeinflußt werden, so spielt die Bauweise der Häuser eine bedeutende Rolle. Anhaltspunkte ergeben sich aus Baujahr, Unterkellerung sowie der Art der Fenster. Besonders aus dem Baujahr des Hauses in Verbindung mit der Art der Fenster kann man auf eventuell durchgeführte Umbaumaßnahmen speziell im Hinblick auf Energieeinsparung schließen. Da insgesamt nur 184 Datensätze von Fachwerkhäusern zur Verfügung stehen, sind bei einer weiteren Untergruppierung in einzelnen Klassen oft nur wenige Datensätze vorhanden. Aus diesem Grund sind die sich ergebenden Unterschiede bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5 % nicht immer statistisch signifikant. Dennoch kann aus den Daten ein Trend abgelesen werden. Wenn weniger als 10 Datensätze in einer Untergruppe zu finden sind, werden keine Angaben gemacht.

Aus der Karte 6.15 ist die regionale Verteilung der Messungen in Fachwerkhäusern zu erkennen. Es wird deutlich, daß der überwiegende Anteil der Messungen im Bereich der deutschen Mittelgebirge durchgeführt wurde. Der Einfluß der Unterkellerung auf die Radonkonzentration bei Fachwerkhäusern unterschiedlichen Alters ist aus Abb. 6.16 zu entnehmen. Deutlich niedrigere Medianwerte, 40-45 Bq/m³, im Vergleich zum Medianwert aller Fachwerkhäuser, zeigen vollunterkellerte Fachwerkhäuser unabhängig vom Baujahr sowie teilunterkellerte Fachwerkhäuser, die nach 1948 gebaut wurden. Höhere Medianwerte, 55-61 Bq/m³, ergeben sich bei teilweise und nicht unterkellerten Fachwerkhäusern sofern,diese vor 1948 gebaut wurden. Der höchste Medianwert mit 61 Bq/m³ wurde für die Gruppe der nicht unterkellerten Fachwerkhäuser mit Baujahr vor 1900 ermittelt.

Im Gegensatz zur Gesamtmeßreihe hat die Art der Fenster einen erheblichen Einfluß auf die Höhe der Radonkonzentration in Fachwerkhäusern. In Häusern mit Fenstern ohne Dichtung wurden im Vergleich zu allen Fachwerkhäusern ähnliche oder niedrigere Medianwerte für die Radonkonzentration gefunden (Abb. 6.17). Deutlich höhere Radonkonzentration zeigen die Häuser mit Isolierverglasung und Dichtung. Der Medianwert für Häuser gebaut vor 1900 beträgt 68 Bq/m³, für Häuser gebaut zwischen 1900 und 1948 sogar 72 Bq/m³. Dabei spielt weniger die Art der Verglasung als vielmehr das Vorhandensein einer Dichtung eine wesentliche Rolle. Dies wird besonders deutlich, wenn man Häuser mit unterschiedlicher Unterkellerung



Abb. 6.15 Verteilung der Meßorte sowie gemessene Radonkonzentrationen von Fachwerkhäusern



Abb. 6.16 Einfluß der Unterkellerung auf die Radonkonzentration in Fachwerkhäusern unterschiedlichen Alters



Abb. 6.17 Einfluß unterschiedlicher Arten von Fenstern auf die Radonkonzentration in Fachwerkhäusern unterschiedlichen Alters

und Fenstern mit Isolierverglasung mit und ohne Dichtung betrachtet (Abb. 6.17). Im Gegensatz zu vollunterkellerten bzw. nicht unterkellerten Häusern mit Isolierverglasung ohne Dichtung sowie zu teilunterkellerten Häusern mit Isolierverglasung ohne Dichtung liegt der Medianwert für Fachwerkhäuser mit Isolierverglasung einschließlich Dichtung mit 81 Bq/m³ (Abb. 6.18) erheblich über dem Medianwert aller Fachwerkhäuser.



Abb. 6.18 Unterschiede in der Radonkonzentration bei Fachwerkhäusern mit isolierverglasten Fenstern und unterschiedlicher Unterkellerung

6.2.5 Spezielle Auswertungen

6.2.5.1 Freudenstädter Verwerfung

Im Verlauf der Erhebungsmessungen wurden in der Meßperiode April bis Juni 1982 im Landkreis Freudenstadt in einigen Wohnungen erhöhte Radonkonzentrationen gemessen (Tab. 6.5, Abb. 6.19). Die Messungen wurden 1983 noch dreimal wiederholt. In den beiden Meßperioden Januar bis April 1983 und Mai bis August 1983 waren die gefundenen mittleren Radonkonzentrationen im Bereich von 30 bis 100 Bq/m³ in den Wohnungen und 10 bis 30 Bq/m³ im Freien und damit bis zum Faktor 8 kleiner als die der ersten Meßperiode. In der Meßzeit September bis November 1983 wurden wiederum erhöhte Radonkonzentrationen ermittelt. Auffallend ist, daß während der beiden Meßperioden mit erhöhter mittlerer Radonkonzentration im Gegensatz zu den übrigen die Meßwerte im Freien ebenso hoch waren wie die Meßwerte in den Wohnungen, was auf den Erdboden als Radonquelle hinweist.

Alle in Tab. 6.5 angegebenen Häuser sind oft nur wenige Meter von Verwerfungen entfernt. Es ist bekannt, daß im Bereich solcher Verwerfungen – und nicht nur vor Erdbeben –, erhöhte Radonaustritte stattfinden können (Fl 78). Während der beiden in Frage kommenden Zeiträume wurden von der nur wenige Kilometer entfernten seismologischen Beobachtungsstation der Universitäten

Karlsruhe und Stuttgart keine besonderen Aktivitäten registriert.

Es wurde ebenfalls versucht, diese erhöhten Radonkonzentrationen auf besondere Wetterdaten (Abb. 6.20) zurückzuführen, jedoch ohne Erfolg. Eine Erklärung für diese zeitweise erhöhten Radonkonzentrationen konnte nicht gefunden werden.

6.2.5.2 Durch früheren Bergbau beeinflußte Radonkonzentration im Freien und in Häusern

Im Verlauf der Erhebungsmessungen wurde in der Nähe von Aalen, Württemberg, in einem Wohnzimmer eine über drei Monate gemittelte

| Tab. 6.5 | Zeitlicher Verlauf der Radonkonzentration in einigen |
|----------|--|
| | Wohnhäusern und im Freien im Landkreis Freudenstadt |
| | (vgl. Abb. 6.19) |

| | Ra | donkonz | entration | in | Bqm ⁻³ |
|-------------|------|---------|-----------|--------------|-------------------|
| Wohnung Nr. | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
| AprJun. 82 | | | | | |
| Keller | 233 | | - | - | |
| Wohnung | - | 237 | 110 | 440 | 229 |
| im Freien | 237 | 310 | - | 330 | 266* |
| JanApr. 83 | | | | | |
| Keller | 33 | 33 | 56 | _ | 115 |
| Wohnung | 59 | 33 | 31 | | 33 |
| im Freien | 11 | 11 | 19 | - | 11* |
| Mai-Aug. 83 | | | | | |
| Keller | 48 | 59 | 59 | 1 000 | 122 |
| Wohnung | . 30 | 48 | 30 | 260 | 33 |
| im Freien | 19 | 14 | 33 | 33 | 26* |
| SeptNov. 83 | | | | | |
| Keller | 200 | 85 | 104 | - | 91 |
| Wohnung | 159 | 89 | 87 | 65 | 78 |
| im Freien | 229 | 174 | 84 | 62 | 59* |

*) Meßort Balkon



Abb. 6.19 Meßpunkte im Landkreis Freudenstadt



Abb. 6.20 Zeitlicher Verlauf der Radonkonzentration in typischem Wohnhaus - Wetterdaten der Klimastation Freudenstadt im Vergleich

Radonkonzentration von 640 Bq/m³ gefunden. Durch Nachmessungen zur gleichen Jahreszeit ein Jahr später (Tab. 6.6) konnte dieser Wert bestätigt werden. Nachforschungen ergaben, daß dieses Haus teilweise aus sogenannten "Dopfersteinen" gebaut wurde. "Dopfersteine" wurden in den Jahren 1880 bis 1920 als billiges Baumaterial aus der Schlacke der Eisenhütten von Aalen/Wasseralfingen hergestellt. Der im Vergleich zum Uran - Radium hohe Thoriumanteil der Dopfersteine (Tab. 6.6) deutet an, daß die hohe "Radonkonzentration" möglicherweise ein als Radon interpretier tes Thoron ist, was bei einer vorhandenen Querempfindlichkeit des Dosimeters möglich ist. Leider konnten keine Messungen mit anderen geeigneten Meßverfahren in diesem Haus durchgeführt werden. Ebenso konnten keine Messungen auf noch wenigen vorhandenen Schlackenhalden (auf privatem Firmengelände) durchgeführt werden. Untersuchungen in einem parallel durchgeführten Forschungsprogramm "Freisetzung radioaktiver Elemente aus Bergbauhalden" ergaben, daß der hohe Thoriumgehalt der Schlacke nicht aus der Gegend von Aalen stammenden Eisenerz kommen kann, sondern möglicherweise aus der Kohle kommen muß. Dies kann auch eine Erklärung für die bei den "Erhebungsmessungen zur terretrischen Strahlung in Wohnungen und im Freien" (BMI 78) gefundenen unerwartet hohen Ortsdosisleistung in Wohnungen im Gegensatz zur Ortsdosisleistung im Freien in einem eng begrenzten Gebiet um Aalen sein.

Tab. 6.6 Radonkonzentration in einem Wohnhaus mit "Dopfersteinen" als Baumaterial

| Zeit | Ort | gemessene mittlere R don- konzentration |
|---------------|---|--|
| März-Juni 82 | Wohnzimmer, EG. (Dopfersteine") | 640 Bqm ⁻³ |
| | Im Freien | 18 Bqm ⁻³ |
| April-Juli 83 | Wohnzimmer, EG. "Dopfersteine" | 410 Bqm ⁻³ |
| | Schlafzimmer, OG. Fachwerk, Lehm, Holz | 37 Bqm ⁻³ |
| | Keller Beton, "Dopfersteine" | 180 Bqm ⁻³ |
| Baumaterial | U Th < 0.33 ppm 15 ppm | ^{22 6} Ra 48Bq/g |

Im Verlauf des Haldenforschungsprogramms wurden in der Umgebung der Halden, auf den Halden und in den Grubenbauen im Wittichener Tal, Schwarzwald, zahlreiche Radonmessungen durchgeführt. Besonders fielen dabei die unerwartet hohen Radonkonzentrationen in einem an einer Halde gelegenen Wohnhaus auf. Exhalationsmessungen zwischen Haldenfuß und diesem Haus zeigten Radonausgasungsraten bis zu mehr als 3,7 kBqm²s⁻¹. Die gemessene Radonexhalationsrate liegt damit um bis zu zwei Größenordnungen über den normalerweise über Granitboden gefundenen Werten. Eine Oberflächenbeprobung der Halde erg b eine Urankonzentration von 200 ppm, was bei der Annahme von radioaktivem Gleichgewicht einer Radiumkonzentration von 2,6 Bq/g entspricht (Sz 82).

Die Gammadosis im Wohnhaus und in der unmittelbaren Umgebung wurde mehrfach bestimmt und betrug im Wohnbereich 0,3, bergseitig am Haus 0,4, am Haldenfuß 1,0 und auf der Halde 5,0 μ Sv pro Stunde. Der Gammauntergrund im Wittichener Tal beträgt ca. 0,1 - 0,2 μ Sv pro Stunde (Sz 82).

Ab August 1980 wurden im Haus Messungen mit passiven Radondosimetern gemacht. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abb. 6.21 dargestellt. Die Messungen wurden nach dem Brand des Wohnhauses im Juni 1981 eingestellt.

Als Mittelwerte über den gesamten Expositionszeitraum (April 1980 - Juni 1981) ergab sich für den Wohnbereich eine mittlere Radonkonzentration von 1700 Bqm⁻³, für den Schlafbereich von 740 Bqm⁻³, außerhalb des Hauses in 1 bis 2 m Höhe von 300 Bqm⁻³. In vergleichbaren Häusern in einigen 100 m Entfernung wurden 92 bzw. 40 Bqm⁻³ als mittlere Radonkonzentration ermittelt. Bei Punktmessungen im Wohnhaus im Sommer 1980 wurden potentielle α -Energiekonzentrationen von 0,09 bis 0,9 Working Level ermittelt.

Aus Abb. 6.21 ist eine starke monatliche Schwankung der Radonkonzentration ersichtlich. Da die Radonexhalation sehr stark von der Bodenfeuchte abhängt, wurde versucht die erhaltenen Radonkonzentrationen mit klimatologischen Daten der nächsten Beobachtungsstation (Wolfach) zu korrelieren. Die monatliche Niederschlagsmenge ergab kein Ergebnis, erst eine Gegenüberstellung der Regentage im jeweiligen Meßintervall einerseits und der Radonkonzentration andererseits ergab einen hohen Korrelationskoeffizienten (Abb. 6.22).



Abb. 6.21 Zeitliche Änderung der mittleren Radonkonzentration 1980/81 innerhalb bzw. außerhalb eines Hauses in Wittichen



Abb. 6.22 Relative Änderung der Radonkonzentration mit der Niederschlagsmenge

6.3 Radon im Freien gemessen in Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes

Schon zu Beginn der Meßreihe in Wohnhäusern zeichnete sich ab, daß die Ergebnisse der Radonmessungen im Freien, die gleichzeitig mit den Wohnraummessungen durchgeführt wurden, nur sehr schwer interpretierbar bzw. nicht ausreichend zuverlässig sind. Dafür gibt es eine Reihe von Gründen, wie z.B. Exposition der Dosimeter in unterschiedlicher Höhe über dem Erdboden oder in unmittelbarer Nähe von Gebäuden. Als Beispiel für die Höhenabhängigkeit der Radonkonzentration im Freien wurden im Sommer 1983 auf dem ehemaligen Betriebsgelände eines Uranversuchsbergwerkes in Bayern Höhenprofile gemessen (Abb. 6.23). Aus diesen Gründen wurde beschlossen, die Messungen der Radonkonzentration im Freien von den Messungen in Wohnräumen zu trennen und zu standardisieren.



Abb. 6.23 Beispiel für den relativen Verlauf der Radonkonzentration im Freien in Abhängigkeit von der Höhe über dem Erdboden

Es wurde vereinbart, die Messungen einheitlich über das gesamte Bundesgebiet in den Wetterhütten des Deutschen Wetterdienstes durchzuführen. Die Expositionszeit wurde auf ein Jahr festgelegt, um auch bei kleinen Radonkonzentrationen einen ausreichend zuverlässigen Meßwert zu erhalten. Ferner wurden die Dosimeter direkt von den Mitarbeitern der einzelnen Meßstellen in den Wetterhütten aufgestellt, um eine Vordosis und - damit verbunden - eine Verfälschung des Meßwertes zu vermeiden.

6.3.1 Klimahauptstationen

In den Jahren 1981 bis 1983 wurden in insgesamt 85 Wetterhütten der Klimahauptstationen des Deutschen Wetterdienstes über das gesamte Bundesgebiet verteilt Radonmessungen durchgeführt. Zusätzliche Messungen erfolgten in Klimanebenstationen in Schleswig-Holstein, Hessen und Baden-Württemberg. Die Mittelwerte der Radonkonzentrationen für die einzelnen Bundesländer sind in Tab. 6.9 angegeben.

| Tab. | 6.9 | Mittlere Radonkonzentration im Freien: |
|------|-----|---|
| | | Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes |

| Bundesland | Anzahl | Radonkonzentration (Bq/m ³) |
|---------------------|--------|--|
| Schleswig-Holstein | 19 | 8 |
| Hamburg | | _ |
| Niedersachsen | 11 | 11 |
| Bremen | 2 | 12 |
| Nordrhein-Westfalen | 9 | 16 |
| Hessen | 44 | 17 |
| Rheinland-Pfalz | 15 | 16 |
| Baden-Württemberg | 129 | 23 |
| Bayern | 18 | 20 |
| Saarland | 2 | 15 |
| Berlin | 2 | 16 |



Abb. 6.24 Radon im Freien, Medianwerte in Bq/m³, nach Regierungsbezirken. In Klammern ist die Anzahl der Meßstellen angegeben.

6.3.2 Ergebnisse aus einzelnen Gebieten mit dichterem Meßnetz

Zusätzlich zu den Messungen in den Klimahauptstationen wurden in Schleswig-Holstein, Hessen und Baden-Württemberg ebenfalls Messungen in den Klimanebenstationen durchgeführt, um ein dichteres Meßnetz zu erhalten (Abb. 6.25, 6.26 und 6.27/6.28). Dabei ergaben sich in einzelnen Regierungsbezirken in Hessen und in Baden-Württemberg teilweise erhebliche Abweichungen, teilweise wurden die Mittelwerte aus den Klimahauptstationen bestätigt. Im Regierungsbezirk Darmstadt lieferten die Messungen in den beiden Klimahauptstationen einen Mittelwert von 10 Bq/m³, während der Mittelwert aus 16 Klimanebenstationen 17 Bq/m³ betrug. Betrachtet man nur die Klimahauptstationen, so könnte der Eindruck entstehen, daß im Süden Hessens niedrigere Radonkonzentrationen im Freien auftreten. Die Messungen aus dem dichteren Netz der Nebenstationen ergeben jedoch die gleiche Radonkonzentration für alle drei Regierungsbezirke mit 17 Bq/m³.

Ähnlich verhält es sich in Baden-Württemberg. In Abb. 6.27/6.28 sind die einzelnen Meßpunkte eingetragen. Hier weichen die Ergebnisse aus den Klimahauptstationen in den Regierungsbezirken Stuttgart und Tübingen von den Ergebnissen aus dem dichteren Meßnetz deutlich ab, während die Ergebnisse im Bereich des Schwarzwaldes, RB Karlsruhe und RB Freiburg, bestätigt werden.

Der Einfluß der Geologie auf die Radonkonzentration im Freien wird in Baden-Württemberg (Abb. 6.27/6.28) besonders deutlich. Höhere Konzentrationen (größer 20 Bq/m³) wurden überwiegend in Gebieten mit uranhaltigem geologischen Untergrund gemessen. Dies sind insbesondere Granit im Schwarzwald und im Odenwald, z.B. Menzenschwand, vulkanische Gesteine im Bereich der Schwäbischen Alb und des Kaiserstuhls, z.B. Oberrotweil, Liliental sowie in der Molasse im Gebiet um den Bodensee, z.B. Stockach. Im Buntsandstein des Schwarzwaldes, z.B. Hornisgrinde und Wildbad Sommerberg, und im Muschelkalk der Schwäbischen Alb, z.B. Ehingen , Urach und Münsingen, wurden niedrige Radonkonzentrationen (kleiner 20 Bq/m³) gefunden. Nicht erklärt werden können die höheren Radonwerte im Rheingraben, z.B. bei Freistett und Philippsburg. Eine Liste aller Radonmessungen im Freien in den Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes befindet sich im Anhang (A7).



Abb. 6.25 Radonkonzentration im Freien in Schleswig-Holstein: Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes



Abb. 6.26 Radonkonzentration im Freien in Hessen: Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes



Detailkarte siehe Abb. 6.28

Abb. 6.27 Radonkonzentration im Freien in Baden-Württemberg: Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes



Abb. 6.28 Radonkonzentration im Freien in Baden-Württemberg. Südschwarzwald: Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes
Tab. 6.7 ²²⁶Probenahmepunkte, Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes

| | Lage: | Profil/ Bodenart | Geologie: | ²²² Rn Bqm ⁻³ | ^{22 6} Ra mBq g ⁻¹ | ²¹⁰ Pb mBq g ⁻¹ |
|-----------------------|--|---|--|--|---|--|
| Nagold | TK 7418 r 347917 h 538148 sehr lockere Bebauung, Hanglage | 0-0,15m A-Horizont, 0,15-0,30m B-Horizont, 0,30-0,60m C1-Horizont, 0,60C2'Horizont, Probe von 0,3-0,6m/ Podsol, von 0-0,3m sandig-schluffig, dann grobsandig, deutliche Rotfärbung, trocken und gut durchlässig | Buntsandstein (so) | 35 | 28,5 | |
| Triberg | TK 7815 r 344290 h 533260 lockere Bebauung mit leich- ter Hanglage | 0-0,10m wenig humoser A-Horizont; 0,10-0,60m C1-Horizont; 0,60 C2-Horizont (Anstehen- des), Probe von 0,30-0,60m/ Skelettboden (Syrosem aus Granit), Krümelge- füge, A-Horizont sandig-schluffig, C1-Hori- zont, sandig-grusig mit Gesteinsbruchstücken und Feldspatfragmenten, schwache Rotfärbung, trocken und gut durchlässig | Triberger Granit | 31 | 59,5 | <u>4</u> 0,3 |
| Schopfheim- Eichen | TK 8313 r 341323 h 527929 lockere Bebauung, leichte Hanglage | 0-0,6m B-Horizont; 0,6-0,8m Ca-Horizont, an- thropogen verändert, Probe von 0,5-0,8m/ Fremdboden (D), der nicht unmittelbar aus dem Gesteins- bzw. Verwitterungsmaterial des Untergrundes entstanden ist, tonig-schluffig dunkelockerfarben, feucht und wenig durch- lässig | Muschelkalk (mu/mo) | 35 | 87,3 | |
| Wutöschingen | TK 8316 r 345241 h 528063 lockere Bebauung, ebenes Gelände | 0-0,2m A1-Horizont; 0,2-0,9m Ca-Horizont, Probe von 0,6-0,9m/ Rendzina, tonig-schluffig, ockerfarben, im unteren Niveau vereinzelt Gesteinsfragmente, mäßig feucht und wenig durchlässig | Muschelkalk | 35 | 66,6 | |
| Stockach | TK 8120 r 350068 h 530224 lockere Bebauung, leichte Hanglage | wenig A-Horizont, 0-0,7m B-Horizont, 0,7- 0,8m C1-Horizont, Probe von 0,5-0,8m/ Braunerde, tonig-schluffig, im unteren Niveau geröllführend, grau-ockerfarben, feucht und mäßig durchlässig | jungtertiäre Süßwasser - Molasse | 35 | 61,0 | |

| | Lage: | Profil/ Bodenart | Geologie: | ^{22.2} Rn Bqm ³ | ²²⁶ Ra mBq g ⁻¹ | ^{2 1 0} Pb mBq g ⁻¹ |
|---------------------------|--|--|---|--|--|--|
| Freudenstadt | TK 7516 r 345706 h 536879 lockere Bebauung, leichte Hanglage | 0-0,30m A1-Horizont, 0,30-0,80m Ca-Hori- zont, Probe von 0,5-0,8m/ Rendzina (Kalksteinboden), tonig-schluf- fig, hellockerfarben bis grau, stellen- weise tonige Staukörper (g2), feucht und schlecht durchlässig | Muschelkalk (mu1, mu2) | Keller 137 Wohnz. 115 | 37 | 18—25 cps 50 MP |
| Friedrichstal | TK 7516 r 345377 h 537182 sehr lockere Bebauung, Hanglage | 0-0,10m A-Horizont, 0,10-0,40m B-Horizont, 0,40-0,80m C1-Horizont, Probe von 0,5- 0,8m/ Podsol, oben tonig-schluffig, dann sandig- schluffig und grobsandig, deutliche Rot- färbung, trocken und gut durchlässig | Buntsandstein (su) | Keller 60 Wohnz. 100 | 23 | 18-23 cps 50 MP |
| <u>Klosterreichenbach</u> | TK 7416 r 345556 h 537693 lockere Bebauung, leicht geneigtes Gelände | 0-0,90m B-Horizont, kaum A-Horizont, an- thropogene Veränderung der Bodenstruktur, Probe von 0,6-0,9m/ Pseudogley, tonig-schluffig, graue bis schmutzig-gelbe Mergel-Einschaltungen, naß und kaum durchlässig | Diluviale Nie- derterrassen- Bildungen auf vermutlich Paragneis | Keller 127 Wohnz. 83 | 51 | |

6.4 Einfluß des Radiumgehalts des Erdbodens auf die Radonkonzentration im Freien und in Häusern

Der Einfluß der ^{22 6}Ra-Konzentration im Boden der unmittelbaren Umgebung der Radonmeßstelle ist relativ gering. Nur bei völlig gleicher Umgebung und Bodenbeschaffenheit (Waldboden, A₂-Horizont) und unter den günstigen Exhalationsbedingungen (hohe Windstille und geringer Niederschlag) ließ sich für einige Meßstellen eine annehmbare Korrelation der beiden Parameter Bodenkonzentration ^{22 6}Ra und Luftkonzentration ^{2 2 2}Rn nur für den Sommerzeitraum feststellen. Dabei stand einer Änderung der ^{2 2 6}Ra Konzentration in unmittelbarer Nähe der Radonmeßstellen genommenen Bodenproben um den Faktor 5 lediglich eine Radonänderung in der Umgebungsluft von 2,5 gegenüber (Abb. 6.29) (Sc 85).

Aufgrund der von Schmitz (Sc 85) gemachten Beobachtungen wurde versucht einen ähnlichen Zusammenhang für einige Klimastationen in Baden-Württemberg mit einer über ein Jahr gemittelten Radonkonzentration von mehr als 30 Bqm⁻³) (Tab. 6.7) zu finden. Aus Abb. 6.29 ist zu entnehmen, daß zumindest für diese Messungen keine Korrelation gefunden werden konnte. Es sind offensichtlich die Einflüsse wichtiger anderer Faktoren wie meteorologische Parameter vorherrschend. Deshalb kann aufgrund der Radiumkonzentration im Boden im allgemeinen nicht auf die Höhe der Radonkonzentration im Freien geschlossen werden.

Eine Aussage über den Zusammenhang zwischen der Radiumkonzentration im Boden und der Radiumkonzentration in Kellerräumen bzw. Wohnräumen ist aufgrund der wenigen gemachten Messungen (Abb. 6.29, Tab. 6.8) nicht möglich.



Abb. 6.29 Über 2 bzw. 12 Monate gemittelte ^{2 22} Rn-Konzentration im Freien in Abhängigkeit von der ^{2 2 6} Ra-Konzentration im Boden

7. Exposition und Dosisabschätzung

Entscheidend für die Einwirkung der natürlichen Luftaktivität in Räumen auf die dort wohnenden bzw. arbeitenden Menschen ist weniger das Radon selbst als die Inhalation seiner kurzlebigen Zerfallsprodukte. Deren Konzentration läßt sich aus den durch die Erhebungsmessungen ermittelten Radonwerten nur dann ableiten, wenn zuverlässige Angaben über das radioaktive Gleichgewicht zwischen Radon und seinen Zerfallsprodukten in der Raumluft vorliegen.

Eine weitere Unsicherheit für eine realistische Abschätzung der Inhalationsdosis liegt in der Beurteilung der relativen Aufenthaltsdauer des betrachteten Personenkreises und verschiedenen Orten, wie z.B. im Haus, am Arbeitsplatz oder im Freien. Eng damit verknüpft sind die unterschiedlichen Lebensgewohnheiten, Größen, die sich schwer quantifizieren lassen, deren Kenntnis letztlich aber für eine Berechnung der jährlichen Exposition (Konzentration x Zeit) notwendig sind.

Bei der Umrechnung der Expositionswerte in eine Dosis geht man auf Berechnungen zurück, die mit Hilfe von Lungenmodellen theoretisch gewonnen wurden (dosimetrisches Konzept). Durch die Variabilität biologischer und physiologischer Parameter ist dieser Ansatz mit gewissen Unsicherheiten behaftet.

7.1 Gleichgewichtsfaktor

Der Gleichgewichtsfaktor F ist definiert als das Verhältnis der äquivalenten Gleichgewichtskonzentration (C_e) der Zerfallsprodukte* zur Radonkonzentration:

$$F = \frac{C_e}{C_{Rn}}$$
 mit $C_e = 0,105 C_1 + 0,516 C_2 + 0,379 C_3$

Dabei sind C_1 , C_2 und C_3 die Aktivitätskonzentrationen von ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb und ²¹⁴Po.

Die Spannweite der in der Literatur genannten Gleichgewichtsfaktoren für Wohnräume ist sehr groß. Die für das Ausland angegebenen Medianwerte bewegen sich zwischen 0,44 und 0,7 (Tab. 5.1).

Tab. 7.1 Gleichgewichtsfaktoren für Radonzerfallsprodukte in Wohnungen (Ausland)

| Land | Anzahl der Wohnungen | Gleichgewi Median | chtsfaktor F Bereich | Quelle |
|----------|-------------------------|----------------------|-------------------------|----------|
| Kanada | 9 118 | 0,52 | 0,19 - 0,67 | (Mc 80) |
| Finnland | 35 | 0,47 | 0,30 - 0,63 | (Mä 80) |
| Schweden | 225 | 0,44 | 0,1 - 0,8 | (Sw 83) |
| Norwegen | 25 | 0,5 | 0,3 - 0,8 | (St 79b) |
| U.S.A. | 21 | 0,63 | 0,33 - 0,82 | (Ge 80b) |
| Italien | | 0,6 - 0,7 | 0,36 - 0,94 | (Sc 84) |

*) siehe auch "Spezielle Größen und Einheiten" im Anhang A1

Zur Ermittlung repräsentativer F-Werte für die Bundesrepublik wurden im Rahmen des Forschungsprogramms eine Reihe spezieller Untersuchungen durchgeführt (Wi 79, Ke 84). Aus den Messungen geht hervor, daß Störungen des radioaktiven Gleichgewichts zwischen Radon und seinen Zerfallsprodukten in der Raumluft nicht nur von der Lüftungsrate abhängen, sondern auch durch unterschiedliche Aerosolkonzentrationen (Raucher! vgl. Abb. 1.4) und von Abscheideverlusten der Zerfallsprodukte im Raum beeinflußt werden. Es konnte gezeigt werden, daß F relativ unabhängig ist von der absoluten Höhe der ermittelten Radonkonzentration. Weiterhin ergaben Langzeitmessungen in einigen ausgewählten Häusern, daß der Gleichgewichtsfaktor trotz tageszeitlicher und saisonaler Schwankungen der Konzentrationswerte ziemlich konstant bleibt (Wi 84b).

Die beobachteten F-Werte reichen von 0,1 bis 0,9. Schwerpunktmäßig liegen sie im Bereich zwischen 0,3 und 0,4. Wicke gibt für 37 Messungen einen Medianwert von 0,37 an (Wi 82), der entsprechende Wert von Keller und Mitarbeitern basiert auf 130 Messungen und liegt mit 0,33 etwas niedriger (Ke 84).

In 12 Wohnungen wurde über 3 bis 6 Monate integriert der Gleichgewichtsfaktor bestimmt (Abb. 7). Mittelt man über alle Messungen, erhält man einen Gleichgewichtsfaktor von 0.3, wie bereits von Wicke und Keller (Wi 82, Ke 84) ermittelt. Daß dennoch eine generelle Annahme eines mittleren Gleichgewichtsfaktors im Einzelfall zu Fehlern bei der Dosisabschätzung führen kann, deutet eine zweite Spitze der Verteilung bei 0.7 an.



Abb. 7.1 Häufigkeitsverteilung über 3 bis 6 Monate integrierter Gleichgewichtsfaktoren in Wohnhäusern

Für die Erhebungsmessungen wird daher zur Berechnung der mittleren Zerfallsproduktkonzentration aus den Radonwerten ein Gleichgewichtsfaktor von 0,35 vorgeschlagen. Aufgrund der international gemessenen Gleichgewichtsfaktoren (Tab. 5.1) und der integrierten Gleichgewichtsfaktoren werden im folgenden zusätzlich Angaben für einen Gleichgewichtsfaktor von 0,5 in [...] gemacht.

Unter dieser Voraussetzung ergibt sich aus dem ermittelten Radon-Medianwert von 40 Bq/m³ (Abschn. 4.2.2) für die Zerfallsprodukte ein Medianwert von 14 Bq/m³ (20 Bqm⁻³) (C_e). Es wird angenommen, daß die Form der Gesamtverteilung, charakterisiert durch den Streufaktor von 1,8, dabei erhalten bleibt.

7.2 Relative Aufenthaltsdauer in Häusern und im Freien

Bedingt durch die unterschiedlichen Konzentrationsverhältnisse in Häusern und im Freien ist es für die Ermittlung einer durchschnittlichen jährlichen Exposition notwendig, die mittlere Aufenthaltsdauer in Häusern anzugeben.

Für die Bundesrepublik sind in dieser Hinsicht nur wenige Daten verfügbar. Pfister und Pauly (Pf 84) geben 84 % Aufenthaltsdauer in Häusern für die Sommermonate an und 88 % für die Wintermonate. Nach einer Veröffentlichung des National Radiological Protection Board, England, liegt dort die relative Aufenthaltsdauer für die Gesamtbevölkerung in Gebäuden bei 75 % (Br 83). Dieser Wert liegt für Hausfrauen mit 83 % erwartungsgemäß höher.

Von dem wissenschaftlichen Komitee der Vereinten Nationen zur Wirkung von Atomstrahlen (UNSCEAR) wurde für die allgemeine Bevölkerung ein Wert von 80 % für die relative Aufenthaltsdauer in Gebäuden vorgeschlagen (UN 82). Es erscheint zweckmäßig, diesen Wert auf für die Bundesrepublik zu übernehmen.

7.3 Dosisfaktor und Abschätzung der Dosis

Um den Zusammenhang zwischen Radonexposition und zu erwartender Dosis herzustellen, geht man im allgemeinen nicht von der äquivalenten Gleichgewichtskonzentration aus, sondern - weitgehend aus historischen Gründen - von der potentiellen Alphaenergiekonzentration C_n mit der Einheit WL (Working Level)*:

$$C_{p}$$
 (WL) = $\frac{C_{e} (Bq/m^{3})}{3700}$

Die Größe für die Exposition E_p ist gewöhnlich das WLM (Working Level Month). Es ist das Zeitintegral der potentiellen Alphaenergiekonzentration in Einheiten von 170 h (Arbeitszeit pro Monat). Es hat seinen Ursprung im beruflichen Strahlenschutz, kann aber genausogut auf die Strahlenexposition der Bevölkerung angewandt werden. Es ist folgendermaßen definiert:

$$E_p$$
 (WLM) = $\frac{C_p \times t}{170}$ wobei t = Expositionszeit (h)

Demnach ergibt sich mit (1) und (2) aus dem ermittelten Konzentrationswert von 14 Bq/m³ (C_e) bei einem Aufenthalt von 80 % im Haus folgender Expositionswert in einem Jahr:

 $E_p = \frac{14 \times 24 \times 365 \times 0.8}{3700 \times 170} = 0.156 \text{ WLM/a} (0.223 \text{ WLM/a})$

Im Freien liegt der Medianwert für die äquivalente Gleichgewichtskonzentration bei etwa 6 Bq/m³. Bei der Abschätzung wurde der gemessene Radon-Medianwert von 14 Bq/m³ und ein Gleichgewichtsfaktor von 0,4 angenommen (Ke 84). Daraus errechnet sich bei einer relativen Aufenthaltsdauer von 20 % im Freien folgende jährliche Exposition:

$$E_p = \frac{6 \times 24 \times 365 \times 0.2}{3700 \times 170} = 0.016 \text{ WLM/a}$$

* siehe auch "Spezielle Größen und Einheiten" im Anhang A1

Demnach beträgt die Exposition im Freien lediglich 10 % der Exposition im Haus.

Insgesamt liegt also die jährliche Radonexposition bei 0,17 WLM/a (0,24 WLM/a). Da keine Thoronerhebungsmessungen durchgeführt wurden, kann die Abschätzung der Thoronexposition nur mit den wenigen Daten aus Kap. 4 (Gebiet um Karlsruhe) durchgeführt werden. Als Medianwert der jährlichen Thoronexposition erhält man 0,062 WLM/a in Wohnhäusern und 0,005 WLM/a im Freien.

Bei dem sog. dosimetrischen Konzept geht man von einem geometrischen Lungenmodell aus und berechnet zunächst die Deposition der Radonzerfallsprodukte in verschiedenen Bereichen der Lunge mit Hilfe experimenteller Daten. Die Deposition wird hauptsächlich beeinflußt von der Größenverteilung des radioaktiven Aerosols, dem angelagerten und unangelagerten Anteil der potentiellen Alphaenergiekonzentration sowie der Atemrate der Person.

Der unangelagerte Aktivitätsanteil wird infolge der höheren Diffusionsgeschwindigkeit überwiegend im oberen Teil des Atemtraktes (Tracheabronchialbereich (T-B)) abgeschieden, während die an Aerosole gebundenen Zerfallsprodukte überwiegend tiefer in die Lunge (pulmonärer Bereich (P)) eindringen und dort abgeschieden werden.

Nach ihrer Abscheidung werden die Zerfallsprodukte von den im Atemtrakt ablaufenden Transportvorgängen erfaßt. Dabei kommt es entweder zu einer Abreicherung durch das Blut oder durch Verschlucken in den Magen, hervorgerufen durch den durch die Ziliarbewegung in den Bronchien verursachten Schleimtransport. Da die biologische Abreicherung sehr viel langsamer erfolgt als die Abreicherung durch den radioaktiven Zerfall, zerfällt der überwiegende Teil der Radonzerfallsprodukte im Atemtrakt.

Aus der mittleren Verweildauer läßt sich die absorbierte Energiedosis in den verschiedenen Bereichen der Lunge abschätzen. Kritische Bereiche der Lunge sind die Stammzellen des Bronchialepithels, andere empfindliche Zellen im Alveolarepithel und die Bronchiolen.

Die dosimetrischen Größen, die mit dem Strahlenrisiko verknüpft sind, werden also durch die mittlere Dosis der empfindlichen Zellen

im Tracheabronchialbereich und im pulmonären Bereich gekennzeichnet. Bei der Berechnung der Dosis wird der von der ICRP empfohlene Qualitätsfaktor für Alphastrahlung von 20 angewandt (IC 77).

Eine Arbeitsgruppe bei der OECD/NEA empfiehlt für die Umrechnung von Exposition (WLM) in Äquivalentdosis (mSv) einen Dosisfaktor von 80 mSv pro WLM für den Tracheabronchial- und von 10 mSv pro WLM für den pulmonären Bereich (OE 84). Draus ergibt sich auf der Grundlage der bei den Erhebungsmessungen ermittelten Expositionswerten eine jährliche mittlere Äquivalentdosis von 14 mSv für den Tracheabronchial- und von 2 mSv für den pulmonären Bereich (Tab. 7.2). Für die Gesamtlunge erhält man eine mittlere jährliche Äquivalentdosis von etwa 8 mSv (Organdosis).

Um einen internationalen Vergleich und einen Vergleich mit anderen Strahlenexpositionen zu ermöglichen, wird die Strahlenexposition der Lunge zusätzlich als effektive Äquivalentdosis angegeben. Die effektive Äquivalentdosis errechnet sich aus der Äquivalentdosis durch Multiplikation mit einem (Risiko-)Wichtungsfaktor von 0,12 für die Lunge. Die Lunge trägt demnach mit ca. 1 mSv (1.3 mSv) zur jährlichen effektiven Äquivalentdosi bei. Die Exposition und die verschiedenen Dosiswerte sowie deren Schwankungsbreiten sind in Tab. 7.2 angegeben.

Tab. 7.2 Mittlere jährliche Exposition der Bevölkerung durch Radonzerfallsprodukte in Wohnhäusern, Dosiswerte und deren Schwankungsbreite

| Gleichgewichtsfaktor | | Media: 0,35 | nwert 0,5 | 67 % - Bereich 0,35 |
|--|-------|----------------|--------------|------------------------|
| Exposition | WLM/a | 0,17 | 0,24 | 0,1 - 0,3 |
| Äquivalentdosis T-B-Bereich P-Bereich | mSv/a | 14 2 | 19 2,4 | 7,5 - 25 1 - 36 |
| Gesamtlunge | mSv/a | 8 | 11 | 4,5 - 15 |
| Beitrag der Lunge zur effektiven Äquivalentdosis | mSv/a | 0,96 | 1,3 | 0,5 - 1,7 |

Der aus den Daten von Kap. 4 abgeschätzte Beitrag von Thoronzerfallsprodukten zur effektiven Äquivalentdosis beträgt ca. 0,13 mSv/a.

7.4 Risikobetrachtung

Nach dem relativen Risikomodell beträgt der mittlere Risikofaktor für Lungenkrebs – bezogen auf Lebenszeit – 0,01 pro WLM/a (Ja 84). Für Raucher dürfte dieser Faktor um das 1 1/2-fache höher liegen, bei Nichtrauchern nur halb so groß sein (Tab. 7.2).

Unter der Voraussetzung, daß sich dieser bei hohen Radonexpositionen ermittelte Risikofaktor durch lineare Extrapolation auf die Verhältnisse in der Raumluft übertragen läßt, kann man das relative Risikomodell auf die Ergebnisse der Erhebungsmessungen anwenden.

Nach den Abschätzungen im vorangegangenen Abschnitt beträgt die mittlere Exposition der Bevölkerung unter Berücksichtigung von Raumluft und Freiluft etwa 0,17 WLM/a (0,24 WLM/a).

Demnach liegt das Lungenkrebsrisiko aufgrund der Radonexposition für Nichtraucher bei knapp 0,1 % und für Raucher bei 0,25 %. Für die Gesamtbevölkerung ergibt sich ein mittlerer Wert von nahezu 0,2 %. Dabei wird der Anteil an Rauchern mit 30 % angenommen.

Zum Vergleich sind in Tab. 7.3 die entsprechenden Risikowerte angegeben, die sich auf den maximalen Radonwert (Wohnungsmittel) von 1111 Bq/m³ beziehen (in Klammern).

Tab. 7.3 Lungenkrebsrisiko

| | Gesamt- bevölkerung | Nichtraucher | Raucher |
|---|------------------------|---------------------|--------------------|
| mittlerer Risikofaktor, bezogen auf Lebenszeit, (WLM/a) ⁻¹ | 0,01 | 0,005 | 0,015 |
| Lungenkrebsrisiko für eine Exposition von 0,17 WLM/a (4,7 WLM/a) | 0,17 % (4,7 %)* | 0,085 % (2,3 %)* | 0,25 % (6,9 %)* |
| beobachtete spontane Lungenkrebshäufigkeit | 4 % | 1 8 | 10 % |
| Anteil des Radon an der beobachteten Lungenkrebs- häufigkeit (gerundet) | 4 8 | 9 8 | 3 % |

* in Klammern: Werte bezogen auf die maximal gemessene Radonkonzentration von 1111 Bq/m³ (Wohnungsmittel)

Zur Zeit liegt die mittlere spontane Lungenkrebshäufigkeit in der Bundesrepublik in der Größenordnung von 4 %, gemittelt über Männer und Frauen. Dabei liegt dieser Wert für die Gruppe der Raucher bei etwa 10 % und für Nichtraucher bei 1 %.

Daraus ergibt sich, daß bei Rauchern fast 3 % und bei Nichtrauchern nahezu 9 % der beobachteten Fälle möglicherweise der Radonexposition zuzurechnen sind. Über die Gesamtbevölkerung gemittelt, liegt dieser Anteil bei etwa 4 %.

Diese Abschätzungen sind jedoch durch die gemachten Annahmen und Voraussetzungen mit einer relativ großen Unsicherheit behaftet.

8. Beurteilung und Diskussion der Ergebnisse

8.1 Kritische Beurteilung der Stichprobe

Nach den Grundlagen der Statistik kann man das gewonnene Datenmaterial als repräsentativ für die Bundesrepublik Deutschland bezeichnen, wenn die Wohnungen durch ein Verfahren mit Zufallsprinzip ausgewählt worden wären. Durch die vereinbarten Auswahlkriterien flächendeckende Verteilung durch Vergabe von Länder- und Kreisquoten - war dieses Prinzip grundsätzlich verletzt. Hinzu kam, daß sich die Verteilung der Dosimeter mehr an praktischen Gegebenheiten als an statistischen Erwägungen orientierte.

Dennoch zeigte sich bei der Auswertung, daß die gewonnene Stichprobe - soweit Vergleichsmöglichkeiten gegen sind - recht gut die Grundgesamtheit widerspiegelt. Die notwendige merkmalsorientierte Randomisierung (Zufallszuteilung) war ebenfalls weitgehend gegeben. Lediglich auf Kreisebene war, z.B. die zeitliche Randomisierung nicht immer realisiert worden.

Der Stichprobenumfang war insgesamt sicher ausreichend, um die notwendigen Kenngrößen zur statistischen Beschreibung der Grundgesamtheit ermitteln zu können. Nur in wenigen, nach bestimmten Merkmalen separierten Teilgesamtheiten dürfte die Zahl der gemessenen Wohnungen für eine statistische Beurteilung nicht ausreichen. Etwas schwierig gestaltet sich eine Analyse der Meßwerte im Freien. Das - bis auf Hessen, Baden-Württemberg und Schleswig-Holstein relativ dünne Meßnetz gestattet nur bedingt, Aussagen über regionale Unterschiede zu treffen. Wünschenswert wäre daher ein insgesamt dichteres Meßnetz.

Abschließend sei darauf hingewiesen, daß sich die Eintragungen in die Fragebögen leider nicht immer als so zuverlässig erwiesen, wie es erwartet wurde. Selbst mit einer geschickten Plausibilitätsüberprüfung konnten nicht alle fehlerhaften Angaben ermittelt werden (Wi 84).

8.2 Vergleich mit dem Ausland

Ähnliche Meßprogramme zur Abschätzung der Radonexposition der Bevölkerung in Wohnhäusern wurden oder werden in einer Reihe von Ländern in Form von Erhebungsmessungen durchgeführt. Dabei unterscheiden sich die Vorgehensweisen teilweise erheblich. Eine grobe Übersicht über die derzeit verfügbaren Daten gibt Tab. 6.1.

Die größte Zahl von Messungen wurde in Kanada durchgeführt. In ca. 13 000 Punktmessungen wurde gleichzeitig die Radon- und die Zerfallsproduktkonzentration gemessen (nur im Sommer). Punktmessungen wurden ebenfalls in Österreich und in Polen durchgeführt. Bei dieser Vorgehensweise werden zeitliche Schwankungen der Radonkonzentration nicht erfaßt. Die übrigen Länder bevorzugten langzeitig integrierende Meßverfahren. Dabei wurde aus technischen Gründen nur die Radonkonzentration gemessen. Zur Abschätzung der Dosis müssen dabei Annahmen über den Gleichgewichtszustand zwischen Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten gemacht werden. Die Ergebnisse aus den einzelnen Meßreihen sind deshalb nur bedingt vergleichbar. Auch der Umfang der Meßreihen unterscheidet sich sehr stark von dem der deutschen. In keinem Land - abgesehen von Kanada - wurden auch nur annähernd so viele Messungen durchgeführt wie bei den Erhebungsmessungen in der Bundesrepublik. In Tab. 6.1 sind - soweit gemessen auch die ermittelten Gleichgewichtsfaktoren angegeben (vgl. Abschnitt 5.1).

Im Vergleich zu Deutschland wurden deutlich niedrigere Radonkonzentrationen in Kanada, den Niederlanden, Österreich, England und in Polen gefunden. Auffällig ist dabei, daß mit Ausnahme der Niederlande und England in diesen Ländern Punktmessungen mit aktiven Meßverfahren durchgeführt wurden. Eine mögliche Ursache für die bis zum Faktor 4 unterschiedlichen Medianwerte können neben der unterschiedlichen Anzahl durchgeführter Messungen systematische Unterschiede in den Meßverfahren oder in der Vorgehensweise sein.

Besser vergleichbar sind die mit passiven Verfahren durchgeführten übrigen Meßreihen. Die um ca. 50 % höheren Medianwerte in den skandinavischen Ländern und in der Schweiz und der um ca. 35 % niedrigere Medianwert in den Niederlanden dürften sowohl auf Unterschiede in der Geologie als auch in der typischen Bauweise zurückzuführen sein.

Neben diesen allgemeinen Erhebungsmessungen werden - wie in der Bundesrepublik - Forschungsvorhaben durchgeführt, um durch gezielte Messungen Häuser mit hohen Radonkonzentrationen zu ermitteln. Diese Meßreihen können wegen der unterschiedlichen Voraussetzungen allerdings nicht zur Abschätzung der durchschnittlichen Exposition der Bevölkerung herangezogen werden.

8.3 Vergleich mit Empfehlungen zu Grenzwerten

In zahlreichen Ländern wird zur Zeit diskutiert, ob eine Festlegung von Grenz- oder Richtwerten für die natürliche Strahlenexposition überhaupt notwendig oder sinnvoll ist. Eine Auswahl dieser Vorschläge findet sich in Tab. 8.2. Die Einführung verbindlicher Grenzwerte für Schweden hat eine Reihe von praktischen Schwierigkeiten mit sich gebracht (Li 84).

Einen allgemeinen Orientierungsrahmen bildet zur Zeit das von der ICRP* vorgeschlagene Konzept (IC 84). Darin werden Richtwerte für die Radonkonzentration in Häusern vorgeschlagen, bei deren Überschreitung Schutzmaßnahmen in Erwägung gezogen werden sollten. Bei existierenden Häusern empfiehlt die ICRP als Richtwert für den

* International Commission on Radiological Protection

| Land | Anzahl | Meßverfahren | Radon Median Bq/m3 | g | Gleichge- wichts- faktor |
|---------------------------------|--------|--|--------------------------|-----|--------------------------------|
| Deutschland (dieser Bericht) | 5970 | passive integrierende Radondosimeter, Meßzeit 3 Monate, Schlaf- und Wohnzimmer | 40 | 1,8 | 0,35 |
| England (Wr 84) | 367 | passive integrierende Radondosimeter, Meßzeit 2x6 Monate | 14 | 3,1 | 0,53+ |
| Finnland (Ca 84) | 2154 | passives integrierendes offene LR 115 Detekto- ren, 1 Monat im Wohn- zimmer | 64 | 3,1 | 0,4 |
| Kanada (Le 84) | 13413 | Kurzzeitmessung von Radon und Folgepro- dukten im Keller und im Wohnbereich | 17* | | 0,5 |
| Niederlande (Ho 84) | 215 | passive integrierende Radondosimeter, Meßzeit 4 Monate im Wohnzimmer | 26 | | 0,3 |
| Österreich (St 82) | 729 | Kurzzeitmessung von Radon und Folgepro- dukten, oft 4 x pro Jahr | 15 | | 0,6 |
| Polen (Gw 82) | 201 | Kurzzeitmessung von Radon und Folgepro- dukten, bei ungünstigen Ventilationsbedingungen | 9 * | | 0,4 |
| Schweden (Sw 84) | 602 | passive integrierende Radondosimeter, Meß- zeit 2 Wochen, Schlaf- und Wohnzimmer | 67 | | 0,5+ |
| Schweiz (Br 82) | 123 | passive integrierende Radondosimeter in Keller, Schlaf- und Wohnzimmer | 60 | | 0,5+ |

Tab. 8.1 Vergleich der Erhebungsmessungen mit Ergebnissen aus dem Ausland (Wohnhäuser)

¥ Mittelwert

langzeitigen Mittelwert der äquivalenten Gleichgewichtskonzentration (C_e) den Bereich um 200 Bq/m³. Dem entspricht bei Anwendung eines Gleichgewichtsfaktors von 0,35 ein Radonwert von etwa 600 Bq/m³.

Tab. 8.2 Vorgeschlagene oder existierende (*) Grenz- oder Richtwerte: Konzentration Zerfallsprodukte (C_e) (80 % Aufenthalt im Haus)

| Land | Existierende Häuser | Neue Häuser | |
|--------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|--|
| Schweden [*] (SSI 84) | 400 Bq/m ³ (4,5 WLM/a) | 70 Bq/m ³ (0,8 WLM/a) | |
| U.S.A (NC 84) | 180 Bq/m ³ (2 WLM/a) | - | |
| Kanada | 370 Bq/m ³ (4 WLM/a) | - | |
| England (NR 83) | 400 Bq/m ³ (4,5 WLM/a) | 80Bq/m ³ (0,9 WLM/a) | |
| ICRP 39 (IC 84) | 200 Bq/m ³ (2,2 WLM/a) | 100 Bq/m ³ (1,1 WLM/a) | |

* bereits verbindliche Grenzwerte

Für die Planung zukünftiger Häuser schlägt die ICRP ein Optimierungsverfahren vor; dabei sollte als Randbedingung eine Obergrenze von etwa 100 Bq/m³ (C_e) zugrundegelegt werden. Der entsprechende Radonwert liegt etwa bei 300 Bq/m³.

Vergleicht man diese Werte mit der Häufigkeitsverteilung für die ermittelten Radon-Wohnungsmittelwerte, so dürften etwa 0,5 % der Wohnungen über dem Richtwert für neue Gebäude liegen und etwa 0,1 % über dem Richtwert für existierende Häuser (Abb. 8.1). Auf der Basis des derzeitigen Wohnungsbestandes wären in der Bundesrepublik immerhin etwa 5 000 - 40 000 bestehende Wohnungen betroffen.



Abb. 8.1 Summenhäufigkeit für die Radonkonzentrationen in Häusern - Verteilung über 100 Bq/m³. (*) Die Richtwerte sind auf einen Gleichgewichtsfaktor von 0,35 bezogen.

8.4 Bezug zu den Ergebnissen der Erhebungsmessungen zur externen Strahlenexposition

Die Erhebungsmessungen zur Radonexposition sind eingebettet in das Gesamtprogramm "Erhebungsmessungen zur Erfassung der derzeitigen Strahlenexposition in Wohn- und Aufenthaltsräumen". Aus praktischen Gründen wurden seinerzeit die Messungen zur externen Strahlenexposition vorgezogen. In einem BMI-Bericht werden die Ergebnisse dieser Studie mitgeteilt (BMI 78).

Durch die zeitliche Trennung beider Meßkampagnen ist ein direkter Haus-zu-Haus-Vergleich der Gammadosisleistung mit der mittleren Radonkonzentration nicht möglich. Allerdings bietet sich z.B. an,

die jeweiligen Mittelwerte der Länder- bzw. Regierungsbezirke gegenüberzustellen. Eine Korrelationsanalyse der in Tab. 8.3 angegebenen Wertepaare liefert einen Regressionskoeffizienten von R=0,69 bei einem Freiheitsgrad von 28. Nach den statistischen Tabellen (z.B. Sa 84) sind bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5 % die Gammadosisleistung und die Radonkonzentration somit korreliert. Dies bedeutet nicht, daß in jedem Fall bei hoher Gammadosisleistung auch hohe Radonkonzentrationen zu erwarten sind. In Abb. 8.2 ist der Zusammenhang graphisch dargestellt, einschließlich der beiden berechneten Regressionsgraden.

Ähnliche Zusammenhänge zeigen sich z.T. auch bei anderen Merkmalen, wie z.B. bei der Bauweise und beim Alter der Häuser, weniger beim Baumaterial.



Abb. 8.2 Korrelationsanalyse von Gammadosisleistung und Radonkonzentration auf der Ebene der Regierungsbezirke

| Tab. | 8.3 | Gegenüber | ;ste | ellung de: | r Radonwe | erte | und | der | Gammsdosis- |
|------|-----|-----------|------|------------|-----------|------|-----|-------|-----------------------|
| | | leistung | in | Häusern: | Länder- | bzw. | Req | jieru | ungsb ezi rks- |
| | | mittelwer | te | | | | | | |

| Land bzw. Regierungsbezirk | Gammadosisleistung 10 ⁻⁸ Gy/h Mittelwert | Radonkonzentration (Bq/m ³) Medianwert |
|--|---|--|
| Schleswig-Holstein Hamburg Niedersachsen | 6,0 5,6 | 40 27 |
| RB Braunschweig RB Hannover RB Lüneburg RB Weser-Ems | 8,5 8,1* 5,2* 5,3* | 42 40 34 33 |
| Bremen Nordnhein Wostfalon | 5,3 | 29 |
| RB Düsseldorf RB Köln RB Münster RB Detmold RB Arnsberg | 7,4 7,6 6,7 7,6 8,7 | 38 39 29 34 41 |
| Hessen RB Darmstadt RB Gießen RB Kassel | 8,9 9,3 | 45 36 50 |
| Rheinland-Pfalz RB Koblenz RB Trier RB Rheinhessen-Pfalz | 11,8 9,5 9,5 | 65 42 55 |
| Baden-Württemberg RB Stuttgart RB Karlsruhe RB Freiburg RB Tübingen | 7,4 9,0 8,5 6,7 | 40 44 44 39 |
| Bayern RB Oberbayern RB Niederbayern RB Oberpfalz RB Oberfranken RB Mittelfranken RB Unterfranken RB Schwaben | 7,1 8,5 10,2 10,9 8,9 8,9 6,1 | 45 65 42 54 46 39 38 |
| Saarland Berlin | 12,1 7,0 | 42 31 |

* durch die Gebietsreform aggregierte Werte

Nach den Erhebungsmessungen zur externen Strahlenexposition ist die terrestrische Gammadosisleistung in Häusern gegenüber der Freiluft um etwa 1/3 erhöht. Dagegen ist der Unterschied bei der Radonkonzentration mit einem Faktor 3 sehr viel größer.

Der Beitrag der externen terrestrischen Strahlung zur jährlichen effektiven Äquivalentdosis beträgt unter Berücksichtigung eines Aufenthalts in Gebäuden von 80 % knapp 0,5 mSv/a. Etwa doppelt so hoch liegt der entsprechende Beitrag durch Radonzerfallsprodukte.

9. Zusammenfassung

Die Erhebungsmessungen geben einen recht guten Überblick zur derzeitigen Exposition der Bevölkerung in der Bundesrepublik Deutschland durch Radon bzw. seine Zerfallsprodukte.

Die wichtigsten im Rahmen dieser Untersuchung gewonnenen Ergebnisse lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- (1) Die Radonkonzentration unterliegt stärker als die externe Gammastrahlung - ausgeprägten zeitlichen und regionalen Schwankungen. Wichtigste Radonquellen in Häusern sind das Erdreich unter dem Gebäude und teilweise die verwendeten Baumaterialien. Ein bedeutender Einflußfaktor auf die Höhe der Radonkonzentration ist die Luftaustauschrate abhängig von der Bauweise und den Lebensgewohnheiten der Hausbewohner.
- (2) Die Häufigkeitsverteilung der Radonkonzentrationswerte in den 5970 ausgemessenen Wohnungen folgt weitgehend einer logarithmischen Normalverteilung mit einem Medianwert von 40 Bq/m³ und einem Streufaktor von 1,8. Der höchste in der Bundesrepublik ermittelte Radonwert in einer Wohnung liegt über 1000 Bq/m³. Höhere Radonkonzentrationen sind bei gezielter Suche möglich.
- (3) Deutliche regionale Unterschiede ergeben sich aus den verschiedenen geologischen Verhältnissen in der Bundesrepublik. So fin-

. 116

det man u.a. hohe Werte in den ostbayerischen Granitgebieten und im Bereich der tertiären Vulkanite des Neuwieder Beckens. Dagegen sind in Norddeutschland verhältnismäßig geringe Radon-Werte anzutreffen. Weiterhin ergeben sich Anhaltspunkte dafür, daß die Radonkonzentrationen bei Häusern in Großstädten deutlich niedriger liegen als in ländlichen Gebieten.

- (4) Große Bedeutung haben offensichtlich konstruktive Merkmale eines Hauses. So findet man hohe Radonwerte bevorzugt in Einzelhäusern, teilunterkellert oder ohne Keller sowie in alten Häusern mit Naturstein oder Lehm als Wandbaustoff. Deutlich erniedrigt sind die Radonpegel in Leichtbau-Fertighäusern. Eine entsprechende Beobachtung wurde bereits bei den Erhebungsmessungen zur externen Strahlenexposition gemacht.
- (5) Unterschiede zwischen verschiedenen Heizungs- und Fenstersystemen können von Bedeutung sein (Fachwerkhäuser).
- (6) Innerhalb eines Hauses nimmt die Radonkonzentration vom Keller zu höheren Etagen hin ab. Dies ist wiederum ein Hinweis auf die Bedeutung des Erdbodens als Radonquelle.
- (7) Für die Radonkonzentration ergibt sich ein jahreszeitlicher Gang mit einem Minimum im Sommer und einem Maximum in den frühen Wintermonaten.
- (8) Die mittlere Radonkonzentration im Freien ist etwa um den Faktor 3 kleiner als der Medianwert in Häusern. Mit 14 Bq/m³ liegt er deutlich über den bislang publizierten Konzentrationsangaben. Für die Bundesrepublik ist ein deutlicher Nord-Süd-Anstieg erkennbar. der sowohl durch unterschiedliche geologische Verhältnisse als auch durch meteorologische Einflüsse bestimmt sein kann.
- (9) Aus den mittleren Konzentrationswerten (Median) läßt sich unter Berücksichtigung der unterschiedlichen relativen Auf-

enthaltsdauer in Gebäuden (80%) und im Freien (20%) sowie unter Anwendung eines Gleichgewichtsfaktors von 0,35 folgende Dosiswerte ableiten:

| Äquivalentdosis | > 50 % | > 90 % (mSv/a) | > 99 % |
|---------------------------|--------|-------------------|--------|
| T-B-Bereich | 14 | 28 | 77 |
| P-Bereich | 2 | 4 | 11 |
| ges. Lunge | 8 | 16 | 44 |
| effektive Äquivalentdosis | 1 | 2 | 5 |

- (10) Vergleichbare Erhebungsmessungen im Ausland ergaben für skandinavische Länder und die Schweiz höhere, in England und in den Niederlanden deutlich niedrigere Radonkonzentrationen.
- (11) Eine Korrelation der Radonkonzentration in Häusern mit der externen terrestrischen Gammastrahlung konnte nachgewiesen werden. Gut erkennbar ist dieser Zusammenhang bei der regionalen Verteilung der Meßwerte. Der Beitrag der Radonzerfallsprodukte zur effektiven Äquivalentdosis ist im Mittel etwa doppelt so hoch wie der entsprechende Beitrag der externen terrestrischen Gammastrahlung.
- (12) Das mittlere durch Radonzerfallsprodukte hervorgerufene Lungenkrebsrisiko liegt für die Gesamtbevölkerung etwa zwischen 0,1 und 0,2 %.
- (13) Eine Anwendung des ICRP-Konzepts zur Begrenzung der natürlichen Strahlenexposition würde etwa 5000 - 40000 bestehende Wohnungen (0,1 %) in der Bundesrepublik betreffen.

10. Literaturhinweise

- (Al 81) Alter, H. W., et.al., Passive integrating radon monitoring for environmental monitoring, Health Phys. 40, 1981, S. 693 -702.
- (Au 71) Auxier, J. A., A new radon progeny personal dosemeter. Health Phys. Vol. 21, 1971, pp 126-128.
- (BMI 78)Bundesminister des Innern, Die Strahlenexposition von außen in der Bundesrepublik Deutschland durch natürliche radioaktive Stoffe im Freien und in Wohnungen, Bonn 1978.
- (Br 76) Breslin, A. J. MOD Working level dosimeter. NEA Specialist Meeting, Personal Dosimetry and Area Monitoring suitable for Radon and Daughter Products, Elliot Lake, Canada, 4-8 Oct. 1976.
- (Br 78) Breslin, A. J., et.al., An improved time integrating radon monitor. NEA Specialist Meeting Radon Monitoring, Paris, 20.22.Nov., 1978.
- (Br 82) Brunner, H., et.al., Radon in Wohnräumen in der Schweiz -Ergebnisse der Vorstudie 1981/82. Eidg. Institut für Reaktorforschung, Würenlingen, Schweiz. Bericht TM-81-82-11, 1982.
- (Br 83) Brown, L., National radiation survey in the U.K.: indoor occupancy factors. Radiat. Prot. Dosim.5, 1983, pp 203-208.
- (Ca 84) Castrén, O., et.al., Radon measurements in Finnish houses. Radiat.Prot. Dosim. 7, 1984, pp 333-336.
- (Ch 72) Chapuis, A. M., et.al., Dosimetry of radon, Proc. 8th Int. Conf. Nucl. Photog. and SSNTD, Bucharest 1972, pp 319-328.
- (Ch 78) Chapuis, A. M., et.al., Individual Dosimeter for radon and thoron daughters. NEA Specialist Meeting Radon Monitoring, Paris, 20-22 Nov. 1978.
- (Co 80) Cowper, G., et.al., An instrument for the measurement of long-term average radon levels. Proc. "Advances in Radiation Protection Monitoring", Stockholm, 26-30 June 1980, S. 413-421.
- (Cu 73) Culot, M. V. J., et.al., Radon progeny control in buildings. Final Report C00-2273-1, Colorado State University, Fort Collins, Colorado 1973.
- (Du 78) Duport, P., et.al., Appareil individuel pour la Dosimétrie des desconstants du radon. Advances in Radiation Protection Monitors, 26-30 June, Stockholm 1978.
- (Eh 83) Ehrlich, H. G., et.al., Ergebnisse der Radonmessungen in der KFA. Bericht Jül-Spez-205, Kernforschungsanlage Jülich, 1983.
- (Ev 81) Evans, R. D., et.al., Estimate of risk from environmental exposure to radon-222 and its decay products. Nature 290, 1981, pp 98-100.
- (Fi 84) Fisenne, I.M., Radon Measurements at Chester. Report EML-411, Environmental Measurements Laboratory, New York 1984.
- (F1 69) Fleischer, R. L., et.al., Nuclear particle track identification in inorganic solids. Phys. Rev. 89, 1969, pp 563-567.
- (F1 72) Fleischer, R.L., et.al., Particle track etching. Science Vol. 178, 1972, pp 225-263.
- (F1 75) Fleischer, R. L., et.al., Nuclear Tracks in Solids. University of California Press, Berkeley U.S.A. 1975.
- (F1 78) Fleischer, R. L., et.al., Mapping of integrated radon emanation for detection of long distance migration of gases within earth: technique and principles.Journal of Geophys. Res. Vol. 83, 1978, pp 3539-3649.

- (FL 81) Fleischer, R. L., Radon Transport in Earth: A tool for Uranium exploration and earthquake prediction. General Electric Report 81 CRD 208, 1981.
- (Fr 73) Frank, A. L., et.al., A diffusion chamber radon dosimeter for use in mine environment. Nucl. Instr. and Meth. 109, 1973, pp 537-539.
- (Fr 77) Frank, A. L., et.al., Radon and Daughter measurements with active and passive devices using track etch detectors, HASL 325, 1977, pp 6-8.
- (Fr 79) Frank, A. L., et.al., Radon dosimetry using plastic nuclear track detectors. Nucl. Track Detection Vol. 1, 1979, pp 149-179.
- (Ge 77) George, A. C., A passive environmental radon monitor. HASL
- (Ge 80a)Gesell, T. T., et.al., The contribution of radon in tap water to indoor radon concentrations. p. 1347-1363 in: Natural Radiation Environment III (T.F. Gesell, W.M. Lowder, eds.), CONF-780422, Technical Information Service, Springfield, Virginia 1980.
- (Ge 80b) George, A. C., et.al., The distribution of ambient radon and radon daughters in residential buildings in the New Jersey-New York area. p 1272-1291 in: Natural Radiation Environment III. CONF-780422, 1980.
- (Go 80) Gogolak, C. V., Review of ²²²Rn in natural gas produced from unconventional sources. Report EML-385, Environmental Measurements Laboratory, New York 1980.
- (Gu 79) Guggenheim, S. F., et.al., A time integrating environmental radon daughter. Health Phys. Vol. 36, 1979, pp 452-455.
- (Gw 82) Gwiazdowski, B., et.al., Assessment of indoor exposure from gamma emitters and radon-222 in Poland. p. 557-561 in: Natural Radiation Protection Environment (K. Vohra et.al., eds.), Wiley Eastern Limited, 1982.
- (Ha 78) Hassib, G. M., et.al., A low background electrochemical track etch detector as a passive dosimeter for radon/daughters. NEA Specialist Meeting Radon Monitoring, Paris 20-22 Nov. 1978.
- (He 78) Herrmann, D., et.al., Methods of measuring radon and radon daughter products in underground and in free atmosphere air. Advances in Radiation Protection Monitors, Stockholm, 25-30 June 1978.
- (Hu 78) Huber, J., et.al., Comparison of different radon-daughter monitors. NEA Specialist Meeting Radon Monitoring, Paris 20-22 Nov. 1978.
- (Ho 84) Hogeweg, B., et.al., Radiation aspects of indoor environments and related radioecological problems: a study of the situation in the Netherlands. Radiat. Prot. Dosim. 7, 1984, pp 327-331.
- (IC 77) International Commission on Radiological Protection, Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 26, Pergamon Press, Oxford 1977.
- (IC 81) International Commission on Radiological Protection, Limits for Inhalation of Radon Daughters by workers. ICRP Publication 32, Pergamon Iress, Oxford 1981.
- (IC 84) International Commission on Radiological Protection, Principles for Limiting Exposure of the Public to Natural Sources of Radiation. ICRP Publication 39, Pergamon Press, Oxford 1984.

- (Ke 82) Keller, G., et.al., Activity concentrations of ²²² Rn, ²²⁰ Rn and their decay products in German dwellings, dose calculations and estimate of risk. Radiat. Environm. Biophys. 20, 1982, pp 263-274.
- Biophys. 20, 1982, pp 263-274. (Ke 84) Keller, G., et.al., ^{2 22} Rn Concentrations and decay product equilibrium in dwellings and in the open air. Health Phys. (in press), 1984.
- (ko 84) Kolb, W. A., et.al., Enhanced radioactivity due to natural oil and gas production. p. 93-96 in: Radiation-Risk-Protection (A. Kaul, R. Neider, J. Pensko, E.-E. Stieve, H. Brunner, eds.). Fachverband für Strahlenschutz, Jülich, 1984.
- (Kü 79) Künzel, H., Repräsentativumfrage über die Heiz- und Lüftungsverhältnisse in Wohnungen. Gesundheitsingenieur 100, 979, S. 261-265.
- (Le 84) Letourneau, E. G., et.al., Design and interpretation of large surveys for indoor exposures to radon daughters. Radiat. Prot. Dosim. 7, 1984, pp 303-308.
- (Li 84) Lindell, B., A radon control programme in theory and practice. Rad. Prot. Dosim. 7, 1984, pp 417-425.
- (Ma 80) Massera, G. E., et.al., A passive monitor for radon using electrochemical track etch detector. 5th International Congress of IRPA, Jerusalem, 9.14 March 1980.
- (Mä 80) Mäkeläinen, I., Preliminary survey of radon in Finnish dwellings. Presented at the Nordic Society for Radiation Protection Meeting. Radiation in our Environment, Galo, Norwegen, 1980.
- (Mc 79) McCurdy, D. E., et.al., TLD-Dosimetry for personal monitoring of uranium miners. Health Physics Vol. 17, 1979, pp 415-422.
- (Mc 80) McGregor, R. C., et.al., Background concentrations of radon and radon daughters in Canadian homes. Health Phys. 39, 1980, pp 285-289.
- (Mi 83) Miles, J., et.al., Results of a quality assurance exercise for radon and radon decay products of the European Communities - EUR - 8629 EN, 1983.
- (Nc 84) National Council on Radiation Protection and Measurements Exposures from the Uranium Series with Emphasis on Radon and its Daughters. NCRP Report No. 77, Bethesda, Maryland, 1984.
- (NR 83) O'Riordon, M. C., et.al., Human exposure to radon decay products inside dwellings in the United Kingdom. Report NRPB-R152, National Radiological Protection Board, Bhilton, England 1983.
- (OE 82) OECD/NEA, Dosimetry aspects of exposure to radon and thoron daughter products. Report by a Group of Experts of the OECD/ NEA, Paris 1982.
- (Ph 78) Phillips, C. R., et.al., Laboratory and uranium mine evaluation of the CEA track etch personal alpha dosimeter. NEA Specialist Meeting Radon Monitoring, Paris 20-22 Nov. 1978.
- (Pf 84) Pfister, H., et.al., Population exposure due to natural radiation in an urban district of the Federal Republic of Germany. Radiat. Prot. Dosim. 7, 1984, pp 279-282.
- (Ra 40) Rajewski, B., et.al., Bericht über die Schneeberger Untersuchungen. /. Krebsforsch. 49, 1940, S. 312.
- (Re 80) Regulla, D., et.al., Radon daughter monitoring with thermoluminescent detectors. Nucl. Instr. and Meth. 175, 1980, pp 233-235.

- (Sa 74) Sayed, A. M., et.al., Study of the latent fading of NTA film and track etching detectors at various temperatures and humidities. KfK Bericht Nr. 2032, 1974.
- (Sa 84) Sachs, L., Angewandte Statistik, Springer Verlag, Berlin 1984.
- (Sc 82) Schmitz, J., et.al., Emission von Radionukliden aus Halden des alten Silber-Kobalt-Erzbergbaus von Wittichen. Glückauf-Forschungshefte: Vol. 43, Heft 4, 1982.
- (Sc 83) Schmitz, J., et.al., Mine Dumps as a Source for Radon Impact on Buildings. Rad. Prot. Dos. Vol. 7, 1983, pp 63-68.
- (Sc 84) Sciocchetti, G., et.al., Indoor measurements of natural radioactivity in Italy. Radiat. Prot. Dosim. 7, 1984, pp 347-351.
- (Sc 85) Schmitz, J., et.al., Radioökologische Untersuchungen im Raum Mähning/Poppenreuth (Opf.), KfK-Bericht 3940/B, 1985.
- (SSI 84)Statens Stralskyddsinstitut, Radon in housing. Document No. a84-10. National Institute of Radiation Protection, Stockholm 1984.
- (St 79a)Statistisches Bundesamt, Statistisches Jahrbuch 1979 für die Bundesrepublik Deutschland, Verlag W. Kohlhammer, Stuttgart-Mainz 1979.
- (St 79b)Stranden, E., et.al., A study on radon in dwellings. Health Phys. 36, 1979, pp 413-421.
- (St 82) Steinhäusler, F., Long-term investigations in Austria of environmental natural sources of ionizing radiation and their impact on man. Ber. Nat. Med. Ver. Salzburg (Band 6), 1982, pp 7-50.
- (Sw 80a)Swedjemark, G. A., Radon in dwellings in Sweden. p. 1237-1259 <u>in</u>: Natural Radiation Environment III (T.F. Gesell, W.M. Lowder, eds.), CONF-780422, Technical Information Service, Springfield, Virginia, 1980.
- (Sw 80b)Swedjemark, G. A., The ground as source for radon in houses. Report SSI: 1980-10. Swedish National Institute of Radiation Protection, Stockholm 1980.
- (Sw 83) Swedjemark, G. A., The equilibrium factor F. Health Physics 45, 1983, pp 453-462.
- (Sw 84) Swedjemark, G.A., Mjönes, L. Radon and radon daughter concentrations in Swedish homes. Radiat. Prot. Dosim. 7, pp 341-345.
- (To 70) Tommassino, L., Electrochemical etching of damaged track detectors by H.V. pulse and sinusoidal wave form. Internal Report CNEN, Cassacia Rom, Italien, 1970.
- (To 81) Tommassino, L., Electrochemical etching, mechanisms. Nucl. Tracks Vol. 4, 1981, S. 191-196.
- (UN 82) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, United Nations, New York 1982.
- (Ur 81a)Urban, M., et.al., Low Level environmental radon dosimetry with a passive track etch device. Radiat. Prot. Dosim. 1, 1981, pp 97-110.
- (Ur 81b)Urban, M., et.al. A Pilot Study using a short time Filter Technique and a Time Integrating Passive Radon Monitor, Proc. 2nd Spec . Symp. on Natural Radiation Environment, Ed. Vohra K.G. et.al., Wiley Eastern Ltd New Dehli, India 1982, pp 508-534.
- (Ur 83) Urban, M., et.al., Temperature and Humidity dependent fading of neutron induced recoil and alphy-particle tracks in MAKROFOL. Proc. 12th Int. Conf. on Solid State Nuclear Track Detectors, 4-10 Sept. 1983, Acapulco Mexico. 1983, Nuclear Tracks 8, 1984, pp 175-178.

- (Ur 84) Urban, M., Dosisbestimmung durch gleichzeitiges Messen der Radon/ Thoronkonzentration und der Gleichgewichtsfaktoren in Luft mit Hilfe eines passiven Dosimeters, KfK-Bericht 3726, 1984.
- (Wi 79) Wicke, A., Untersuchungen zur Frage der natürlichen Radioaktivität der Luft in Wohn- und Aufenthaltsräumen. Dissertation Universität Gießen, 1979.
- (Wi 83) Wicke, A., Methoden zur Messung von Radon, Thoron und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten in der Luft. Vortrag 5. Fachgespräch "Überwachung der Umweltradioaktivität", 22.-24. März 1983, Kernforschungszentrum Karlsruhe,
- (Wi 84a)Wicke, A., Verwaltung der Daten zu den Erhebungsmessungen "Radon in Wohnungen und im Freien". Bericht Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes, 1984.
- (Wi 84b)Wicke, A., Exposure of the population to radon daughters problems associated with the assessment of the annual dose. Radiat. Prot. Dosim. 7, 1984, pp 337-340.

Liste der Abbildungen

| Abb. | 1.1: | Die natürlichen Zerfallsreihen |
|------|-------|---|
| Abb. | 1.2: | Quellen für Radon in Häusern |
| Abb. | 1.3: | Physikalisches Verhalten von Radon und seinen |
| | | kurzlebigen Zerfallsprodukten in Luft (Po 84) |
| Abb. | 1.4: | Einfluß von Zigarettenrauch auf den Gleichge- |
| | | wichtsfaktor |
| Abb. | 2.1: | α-Wirkungsgrade verschiedener Detektorbereiche |
| Abb. | 2.2: | Aufbau des Meßgerätes |
| Abb. | 2.3: | Typischer Aktivitätsverlauf eines Filters |
| Abb. | 3.1: | Form geätzter Kernspuren nach verschiedenen Ätz- |
| | | zeiten |
| Abb. | 3.2: | Schnitt durch Ätzplatte |
| Abb. | 3.3: | Schnitt durch Ätzpaket |
| Abb. | 3.4: | Ätzpaket im Rahmen |
| Abb. | 3.5: | Zeitlicher Verlauf der bei der elektrochemischen |
| | | Ätzung wichtigen Parameter:Spannung, Strom, Fre- |
| | | quenz und Temperatur während des Ätzvorgangs |
| Abb. | 3.6: | Radondiffusionskammer bestehend aus Kammer, Fil- |
| | | terhalterung, Deckel, Filter und Detektor |
| Abb. | 3.7: | Querschnitt der Karlsruher Radondiffusionkammer |
| Abb. | 3.8: | Relative Empfindlichkeit von LR 115, CR 39 und |
| | | MARKROFOL für verschiedene $lpha$ -Energien |
| Abb. | 3.9: | Orginalbildkopie von $\alpha\text{-}Kernspuren$ in MAKROFOL bei |
| | | 20facher Vergrößerung |
| Abb. | 3.10: | Vergleich von manuell gezählten und automatisch |
| | | gemessenen Kernspuren in elektrochemisch geätzten |
| | | Makrofoldetektoren (automatisches Zellkolonieaus- |
| | | zählgerät) |
| Abb. | 3.11: | Inhomogene Verteilung der Flächendichte der Kern- |
| | | spuren über den Detektor, ermittelt durch Auswer- |
| | | ten von 8 mm² großen Teilflächen entlang des Fo- |
| | | liendurchmessers |
| Abb. | 3.12: | Kalibrierung des Radondosimeters |
| Abb. | 3.13: | Relative Standardabweichung für MAKROFOL, LR 115 |
| | | und CR 39 Kernspurdetektoren in Abhängigkeit von |
| | | Radonexposition im Vergleich zum statistischen |
| | | Zählfehler |
| | | |

- Abb. 3.14: Berechnete relative Standardabweichung für Makrofolkernspurdetektoren als Funktion der Radonexposition im Vergleich mit gemessenen Werten
- Abb. 3.15: Fading von α-Teilchenspuren im elektrochemisch geätzten Makrofoldetektor für verschiedene relative Feuchtigkeiten bei einer Temperatur von 50 °C
- Abb. 4.1: Häufigkeitsverteilung der potentiellen α-Energiekonzentration von Radon (a) und Thoron (b), gemessen mit einer aktiven Filtertechnik und einer passiven Diffusionskammer in Wohnhäusern und im Freien
 Abb. 4.2: Häufigkeitsverteilung der Verhältnisse gemessenen
- Abb. 4.2: Häufigkeitsverteilung der Verhältnisse gemessenen potentieller α-Energien von Radon- und Thoronzerfallsprodukten
- Abb. 5.1: Organisation der Erhebungsmessungen
- Abb. 6.1: Prozentsatz erfaßter Wohnungen, aufgeschlüsselt nach dem Hauptbaumaterial von Wand, Decke und Fußboden
- Abb. 6.2: Häufigkeitsverteilung der Radonwohnungsmittelwerte
- Abb. 6.3: Summenhäufigkeit der Radonwohnungsmittelwerte
- Abb. 6.4: Radonmedianwerte in Häusern nach verschiedenen Bundesländern, Frankfurt und München (Bq/m³). Die Angaben für Bayern und Hessen schließen die Messungen in München bzw. Frankfurt ein.
- Abb. 6.5: Radonmedianwerte in Häusern nach Regierungsbezirken in Bq/m³ (Anzahl erfaßter Wohnungen)
- Abb. 6.6: Verteilung der Meßorte über das gesamte Bundesgebiet sowie über einzelne Gemeinden gemittelte Radonkonzentration in Wohnhäusern
- Abb. 6.7: Radonmedianwert klassifiziert nach dem Haustyp Bq/m³
- Abb. 6.8: Radonmedianwert klassifiziert nach der Bauweise, in Bq/m³
- Abb. 6.9: Radonmedianwert klassifiziert nach Art der Unterkellerung, in Bq/m³
- Abb. 6.10: Radonmedianwerte in verschiedenen Stockwerken, in Bq/m³. Grundlage bilden die zeitlichen Etagenmittelwerte aller Einzelmessungen
- Abb. 6.11: Radonmedianwerte in verschiedenen Räumen, auf der Grundlage von zeitlichen Raummittelwerten der jeweiligen Einzelmessungen (Bq/m³)

Abb. 6.14: Jahreszeitlicher Cang der Radonkonzentration/relativer Verlauf Abb. 6.15: Verteilung der Meßorte sowie die gemessene Radonkonzentration von Fachwerkhäusern Abb. 6.16: Einfluß der Unterkellerung auf die Radonkonzentration in Fachwerkhäusern unterschiedlichen Alters Abb. 6.17: Einfluß unterschiedlicher Arten von Fenstern auf die Radonkonzentration in Fachwerkhäusern unterschiedlichen Alters Abb. 6.18: Unterschiede in der Radonkonzentration bei Fachwerkhäusern mit isolierverglasten Fenstern und unterschiedlicher Unterkellerung Abb. 6.19: Meßpunkte im Landkreis Freudenstadt Abb. 6.20: Zeitlicher Verlauf der Radonkonzentration in typischem Wohnhaus, Wetterdaten der Klimastation Freudenstadt Abb. 6.21: Zeitliche Änderung der mittleren Radonkonzentration innerhalb und außerhalb eines Hauses in Wittichen Abb. 6.22: Relative Änderung der Radonkonzentration mit der Niederschlagsmenge Abb. 6.23: Beispiel für den relativen Verlauf der Radonkonzentration im Freien in Abhängigkeit von der Höhe über dem Erdboden Abb. 6.24: Radon im Freien, Medianwerte in Bq/m³, nach Regierungsbezirken Abb. 6.25: Radonkonzentration im Freien in Schleswig-Holstein: Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes Abb. 6.26: Radonkonzentration im Freien in Hessen: Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes Abb. 6.27: Radonkonzentration im Freien in Baden-Württemberg: Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes Abb. 6.28: Radonkonzentration im Freien in Baden-Württemberg, Südschwarzwald: Klimastationen des Deutschen Wetterdienstes

126

Radonkonzentration in Innenräumen

Unterschiede zwischen verschiedenen Altergruppen

Einfluß unterschiedlicher Wandmaterialien auf die

Abb. 6.12:

Abb. 6.13:

in Bq/m³

- Abb. 6.29: Über 2 bzw. 12 Monate gemittelte Radonkonzentration im Freien in Abhängigkeit vom Radiumgehalt im Boden
- Abb. 7.1: Häufigkeitsverteilung über 3 bis 6 Monate integrierter Gleichgewichtsfaktoren in Wohnhäusern
- Abb. 8.1: Summenhäufigkeit für die Radonkonzentrationen in Häusern - Verteilung über 100 Bq/m³
- Abb. 8.2: Korrelationsanalyse vom Gammadosisleistung und Radonkonzentration auf der Ebene der Regierungsbezirke

Liste der Tabellen

| Tab. | 2.1: | lpha-Wirkungsgrade der Radon- und Thoronfolgeprodukte |
|------|------|--|
| Tab. | 3.1: | Integrierende Dosimeter für Radon und Zerfallspro- |
| | | dukte (aktive Verfahren) |
| Tab. | 3.2: | Integrierende Dosimeter für Radon und Zerfallspro- |
| | | dukte (passive Verfahren) |
| Tab. | 3.3: | Unterschiede in der Spurendichte von Diffusions- |
| | | kammer und offener Kammer bei gleichzeitiger Ex- |
| | | position in einem Wohnraum über 3 Monate |
| Tab. | 3.4: | Angewandte Ätztechnik |
| Tab. | 3.5: | Gemessene Oberflächenätzgeschwindigkeit v von MAKRO- |
| | | FOL bei verschiedenen Temperaturen und Lösungsmit- |
| | | telmischungsverhältnissen |
| Tab. | 3.6: | Eigenschaften von Kernspurdetektoren für die Messung |
| | | von Radon in der Karlsruher Diffusionskammer |
| Tab. | 4.1: | Zuordnung der Meßwerte zum jeweiligen Baumaterial |
| | | der Wände |
| Tab. | 5.1: | Bestand, Zahl der zu messenden und Zahl der tat- |
| | | sächlich gemessenen Wohnungen in der Bundesrepublik |
| | | Deutschland nach Bundesländern |
| Tab. | 5.2: | Liste der an dem Erhebungsmessungsprogramm beteilig- |
| | | ten Institutionen |
| Tab. | 6.1: | Anteil der in dem angegebenen Monat jeweils begonnenen |
| | | Messungen |
| Tab. | 6.2: | Fragtile für die Summenhäufigkeit der Wohnungsmittel- |
| | | werte |
| Tab. | 6.3: | Unterschiede zwischen den Bundesländern (95 % Signi- |
| | | fikanzniveau) |
| Tab. | 6.4: | Statistische Unterschiede zwischen verschiedenen |
| | | Baumaterialien am Beispiel der Wandbaustoffe (95 % |
| | | Signifikanzniveau) |
| Tab. | 6.5: | Zeitlicher Verlauf der Radonkonzentration in einigen |
| | | Wohnhäusern und im Freien im Landkreis Freudenstadt |
| Tab. | 6.6: | Radonkonzentration in einem Wohnhaus mit "Dopfer- |
| | | steinen" als Baumaterial |

| Tab. | 6.7: | ²²⁶ Ra Probenahmepunkte, Klimastationen des Deutschen | | | | | | |
|------|------|--|--|--|--|--|--|--|
| | | Wetterdienstes | | | | | | |
| Tab. | 6.8: | ²²⁶ Ra Probenahmepunkte, Wohnhäuser | | | | | | |
| Tab. | 7.1: | Gleichgewichtsfaktoren für Radonzerfallsprodukte | | | | | | |
| | | in Wohnungen (Ausland) | | | | | | |
| Tab. | 7.2: | Mittlere jährliche Exposition der Bevölkerung durch | | | | | | |
| | | Radonzerfallsprodukte in Wohnhäusern - Dosiswerte | | | | | | |
| | | und deren Schwankungsbreite | | | | | | |
| Tab. | 7.3: | Lungenkrebsrisiko | | | | | | |
| Tab. | 8.1: | Vergleich der Erhebungsmessungen mit Ergebnissen | | | | | | |
| | | aus dem Ausland (Wohnhäuser) | | | | | | |
| Tab. | 8.2: | Vorgeschlagene oder existierende Grenz- oder Richt- | | | | | | |
| | | werte: Konzentration der Zerfallsprodukte (C_) | | | | | | |
| Tab. | 8.3: | Gegenüberstellung der Radonwerte und der Gammadosis- | | | | | | |
| | | leistung in Häusern: Länder- bzw. Regierungsbezirks- | | | | | | |
| | | mittelwerte | | | | | | |

Anhang A1: Begriffe, Definitionen, Zerfallsreihen

Potentielle Alphaenergie-Konzentration

Tab. A1.1 enthält die Halbwertszeiten, Zerfallskonstanten und die jeweiligen Alphaenergien für Rn-222 und seine kurzlebigen Zerfallsprodukte.

| Iab. A.I.I. Derialibuaten von nn-222 und Zerialibproduk | Tab. | A.1.1: | Zerfallsdaten | von | Rn-222 | und | Zerfallsproduk | te |
|---|------|--------|---------------|-----|--------|-----|----------------|----|
|---|------|--------|---------------|-----|--------|-----|----------------|----|

| Radionu | lklid | Halbwerts | zeit 2 | erfall (s ⁻ | .skc ·1) | onstante | Alphaenergi (MeV) | e |
|---------|--------|-----------|--------|---------------------------|-------------|------------------|----------------------|---|
| | | | | | | _ | | |
| Rn-222 | (Rn) | 3,8 d | | 2,1 | | 10 ⁻⁶ | 5,49 | |
| Po-218 | (RaA) | 3,05 | min | 3,79 | • | 10 - 3 | 6,00 | |
| Pb-214 | (RaB) | 26,8 | min | 0,43 | • | 10-3 | - | |
| Bi-214 | (RaC) | 19,7 | min | 0,57 | • | 10-3 | | |
| Po-214 | (RaC') | 164 | μs | 4,17 | • | 10-3 | 7,69 | |

Die potentielle Alphaenergie ($\epsilon_{\rm p}$) eines Zerfallsproduktatoms von Rn-222 ist die gesamte Alphaenergie, die beim Zerfall dieses Atoms längs der Zerfallskette bis einschließlich Po-214 freigesetzt wird. Unter Berücksichtigung der Zerfallskonstanten (2) läßt sich die potentielle Alphaenergie auch auf Aktivität, z.B. 1 Bq, beziehen ($\epsilon_{\rm p}/\lambda$). Die Einzelwerte sind Tab. A.1.2 zu entnehmen.

Tab. A.1.2: Potentielle α-Energien der ²²²Rn-Zerfallsprodukte

| Radionuk] | Lid | Potentielle Alppro Atom (ϵ_p) | pro Bq (ε _p /λ) |
|--|--|--|---------------------------------------|
| Po-218 (F Pb-214 (F Bi-214 (F Po-214 (F | RaA) RaB) RaC) RaC ') | 13,7 7,69 7,69 7,69 7,69 | 3 620 17 800 13 100 2 • 10-3 |

* übernommen aus ICRP Publication No 32

Die potentielle Alphaenergie-Konzentration einer beliebigen Mischung von kurzlebigen Radon-Zerfallsprodukten ist die Summe der potentiellen Alphaenergie aller Zerfallsprodukte pro Volumen Luft. Ist C_i die Aktivitätskonzentration des Zerfallsprodukts i in Luft, erhält man die potentielle Alphaenergiekonzentration c_p durch:

$$C_p = \sum_i C_{p,i} = \sum_i C_i \epsilon_{pi} / \lambda_i$$
 (A1.1)

summiert über alle Nuklide bis ²¹⁴Po einschließlich. Die SI-Einheit lautet:

 $1 \text{ J m}^{-3} = 6,242 \cdot 10^{12} \text{ MeV m}^{-3}$

Häufig wird die Einheit WL ("Working Level") verwendet:

$$1 \text{ WL} = 1,3 \cdot 10^8 \text{ MeV m}^{-3}$$
 (A1.2)

1 WL der potentiellen Alphaenergie-Konzentration von kurzlebigen Zerfallsprodukten entspricht im radioaktiven Gleichgewicht mit 222 Rn einer Radonkonzentration von 3 700 Bq m⁻³.

Die Konversionsfaktoren zwischen Aktivitätskonzentration (in Bq m^{-3} und potentieller Alphaenergie-Konzentration sind in Tab. A1.3 zusammengestellt.

Tab. A1.3: Potentielle α -Energie-Konzentration pro Bq m⁻³

| Radionuklid | | MeV m-3 | 10 ^{↑0} J m ⁻³ | 10 ⁻⁶ WL | |
|------------------------------|---|--|------------------------------------|------------------------|--|
| 800-000 - Frinker (no. 1990) | ىرىغۇرىغە يەرەپ <u>مۇرىمىتىنى ئەرەپ مەرەپ مەرەپ</u> | A 1996 - Y - Y - Y - Y - Y - Y - Y - Y - Y - | | | |
| Po-218 | (RaA) | 3 620 | 5,79 | 27,8 | |
| Pb-214 | (RaB) | 17 800 | 28,6 | 137 | |
| Bi-214 | (RaC) | 13 100 | 21,0 | 101 | |
| Po-214 | (RaC') | 1 • 10-3 | 3 • 10 ⁻⁶ | 1,6 • 10 ⁻⁵ | |

Äquivalente Gleichgewichtskonzentration (C_e) und Gleichgewichtsfaktor (F)

Die äquivalente Gleichgewichtskonzentration (C_e^{*}) einer Mischung von kurzlebigen Zerfallsprodukten, die nicht im radioaktiven Gleichgewicht mit Radon stehen, ist die Radonkonzentration im Gleichgewicht mit den kurzlebigen Zerfallsprodukten, die die gleiche potentielle Alphaenergie-Konzentration hat wie die Mischung der kurzlebigen Zerfallsprodukte. Nach Tab. A1.3 erhält man:

$$C_e = 2,85 \cdot 10^{-5} C_p (MeV m^{-3})$$

= 1,78 · 10⁸ C_p (J m⁻³)
= 3 700 C_p (WL)

In Verbindung mit Gl. (A1) ergibt sich:

$$C_{e} (Bq/m^{3}) = 2,85 \cdot 10^{-5} \sum_{i} C_{i} \cdot \epsilon_{pi} / \lambda_{i} (A1.4)$$

= 0,105 $C_{1} + 0,516 C_{2} + 0,379 C_{3},$

dabei sind C_1 , C_2 und C_3 die Aktivitätskonzentrationen von Po-218, Pb-214 und Po-214 (in Bq/m³).

Der Gleichgewichtsfaktor F hinsichtlich der potentiellen α -Energie ist definiert als das Verhältnis von äquivalenter Gleichgewichts-Konzentration C_e zur tatsächlichen Radonkonzentration C_{Rn} in der Luft:

$$F = \frac{C_e}{C_{Rn}}$$
(A1.5)

^{*} in der Fachliteratur auch EEC, EER oder EC, "equilibrium equivalent concentration"
Exposition (E)

Die "Aktivitäts-Exposition" (E) einer Person ist das Zeitintegral über die Aktivitätskonzentration, der der einzelne während einer bestimmten Zeitperiode ausgesetzt ist. Die Einheit ist z.B. Bg \cdot h m⁻³

Die Exposition bezüglich der potentiellen α-Energie-Konzentration (E_p) ist entsprechend das Zeitintegral über die potentiellle α-Energie-Konzentration einer Zerfallsprodukt-Mischung. E_p kann in folgenden Einheiten ausgedrückt werden:

 $1 \text{ J h m}^{-3} = 6,24 \cdot 10^{12} \text{ MeV h m}^{-3} = 4,8 \cdot 10^4 \text{ WL h}$ (A1.6)

Bei Bergarbeitern wird die Exposition oft in der Einheit WLM (Working Level Month) ausgedrückt. 1 WLM entspricht einer Exposition von 1 WL während einer Referenz-Arbeitszeit von 1 Monat (2 000 h pro Jahr/12 Monate 170 h).

1 WLM = 1WL \cdot 170 h = 2,2 \cdot 10¹⁰ MeV h m⁻³ = 3,5 \cdot 10⁻³ J h m⁻³

Da 1 Wl einer äquivalenten Gleichgewichtskonzentration (C_e) von 3 700 Bq m⁻³ entspricht, ist die Exposition von 1 WLM mit einer Exposition von 6,3 \cdot 10⁵ Bq h m⁻³ gleichzusetzen.

A2 Anhang Filtermeßverfahren

A2.1 Wirkungsgradbestimmung des Detektors

A2.1.1 Wirkungsgrad von ²¹⁴Po

Der Wirkungsgrad bei 7,68 MeV α -Strahlung wurde unter der Annahme eines Gleichgewichtszustandes von ²¹⁴Bi und ²¹⁴Po durch gleichzeitiges Auswerten der α -Impulse von ²¹⁴Po und der 609 keV- γ tlinie des ²¹⁴Bi ermittelt:

 $\eta_{214}P_{PO} = 0,3788$ 1,6 % (relativer 1 σ -Fehler)

A2.1.2 Berechnen der Wirkungsgrade bei anderen a-Energien

Der Detektorwirkungsgrad ist

$$n = G \cdot f \cdot E$$

G : Geometriefaktor

f : Selbstabsorptionskoeffizient der Probe

```
E : Ansprechwahrscheinlichkeit des Zählers, darf E = 1
angenommen werden
```

Es sollen nun Selbstabsorption und Geometriefaktor zu einem neuen "Geometriefaktor" G* mit

$$G^* = G \cdot f \cdot E$$

zusammengefaßt werden.

Bestimmen des Geometriefaktors G*

R = 0,381
$$\left(\frac{E}{MeV}\right)^{3/2}$$
 in mg/cm²

sowie den Flächengewichten bzw. der Dicke bei senkrechtem Durchtritt der α .-Strahlung von

erhält man für die Reichweite

$$R = \frac{1}{\cos w} (1,29 \frac{mg}{cm^2} \frac{X}{cm} + 0,9 \frac{mg}{cm^2} = 0,381 (\frac{E}{MeV})^{3/2}$$

Für den Anteil am Raumwinkel, der durch die begrenzte Reichweite der α -Strahlung vom Detektor erfaßt wird, erhält man

$$G = \frac{\Omega}{4\pi} = \frac{1}{2} (1 - \cos w)$$

und mit (A.2.2)

$$G = \frac{1}{2} \{ 1 - \frac{1,29 \frac{X}{cm} + 0,9}{0,381 (\frac{E}{MeV})^{3/2}} \}$$

X : Abstand Strahler - Detektorfenster

Der Abstand zwischen Strahler und Detektorfolie läßt sich nicht bestimmen, kann aber durch bereits bekannten Wirkungsgrad n_{RaC} ,= n_4 und bekannte Energie E eliminiert werden.

Man erhält dann

$$n_{i} = \frac{1}{2} \{ 1 - (1 - 2 n_{4}) - (\frac{E_{4}}{E_{i}})^{3/2} \}$$

für die Wirkungsgrade.

A2.1.3 Auswirkung des Wirkungsgradfehlers bei 7,68 MeV auf die Wirkungsgrade anderer α-Energien

Mit (A.2.5)

$$n_{i} = \frac{1}{2} \{ 1 - (1 - 2 n_{4}) (\frac{E_{4}}{E_{i}})^{3/2} \}$$
 erhält man

$$\frac{dn_{i}}{dn_{4}} = \left(\frac{E_{4}}{E_{i}}\right)^{3/2}$$

für kleine Abweichungen

$$\Delta \eta_{i} = \left(\frac{E_{4}}{E_{i}}\right)^{3/2} \Delta \eta_{4}$$
$$\Delta \eta_{i} = \left(\frac{E_{4}}{E_{i}}\right)^{3/2} \frac{\eta_{4}}{\eta_{4}} \frac{\Delta \eta_{4}}{\eta_{4}}$$

Setzt man η_i aus (A.2.5) ein, erhält man

$$\frac{\Delta n_{i}}{n_{i}} = \frac{\left(\frac{E_{4}}{E_{i}}\right)^{3/2} \cdot \frac{\Delta n_{4}}{n_{4}}}{1 - \left(\frac{E_{4}}{E_{i}}\right)^{3/2} + n_{4}\left(\frac{E_{4}}{E_{i}}\right)^{3/2}} = \frac{\frac{\Delta n_{4}}{n_{4}}}{1 - \left(\frac{E_{4}}{E_{i}}\right)^{3/2}} = \frac{1}{1 - \left(\frac{E_{4}}{E_{i}}\right)^{3/2}} = \frac{1}{1 - \left(\frac{E_{i}}{E_{4}}\right)^{3/2}} = \frac{1}{1 - \left(\frac{E_{i}}{E_{4}}\right)^{3$$

Hier sei $\frac{\Delta \eta_i}{\eta_i}$ die bezogene Varianz $\frac{\sigma \eta_i}{\eta_i}$

$$\frac{\sigma \eta_{i}}{\eta} = \frac{1}{1 - (\frac{E_{i}}{E_{4}})^{3/2}} \frac{\sigma \eta_{4}}{\eta_{4}}$$
(A.2.6)
$$1 - (\frac{E_{i}}{E_{4}})^{3/2} \frac{\eta_{4}}{\eta_{4}}$$

Mit $\frac{\sigma \eta_i}{\eta_i} = A \frac{\sigma \eta_4}{\eta_4}$ erhält man folgende Streuungen der Einzelwirkungs-

grade:

| Folgeprodukt | pot. Energie in MeV | A | α _i η _i in % |
|---------------------|------------------------|-------|---------------------------------------|
| ^{2 1 4} Po | 7,687 | 1 | 1,6 |
| ^{2 1 8} Po | 6,003 | 5,503 | 8,8 |
| ²¹² Bi | 6,05 | 4,835 | 7,73 |
| | 6,09 | | |
| ^{2 1 2} Po | 8,784 | 0,631 | 1,01 |

Tab. A.2.1 Bezogene 1 o - Streuung für Einzelwirkungsgrade

A2.1.4 Wirkungsgradfehler der Teilchendichten

Bei Sammelende sind folgende Teilchenzahlen auf dem Filter Indices: $N_1 = H_{11} n_1$ $N_2 = H_{21} + H_{22} n_2$ $N_3 = H_{31} + H_{32} n_2 + H_{33} n_3$ $N_4 = H_{44} n_4$ $1: {}^{218}Po$ $2: {}^{214}Pb$ $3: {}^{214}Bi$ $4: {}^{212}Pb$

N_i: Teilchenzahlen am Sammelende

Für die Teilchendichten in Luft erhält man hieraus

$$n_{1} = \frac{N_{1}}{H_{11}} = \frac{A_{1}}{\lambda_{1} H_{11}}$$

$$n_{2} = \frac{N_{2}}{H_{22}} - \frac{H_{21}}{H_{22}H_{11}} = \frac{A_{2}}{\lambda_{2} H_{22}} - \frac{H_{21}}{H_{22}H_{11}} \frac{A_{1}}{\lambda_{1}}$$

$$n_{3} = \frac{N_{3}}{H_{33}} - \frac{H_{32}N_{2}}{H_{33}H_{22}} \left(\frac{H_{31}}{H_{33}} - \frac{H_{21}H_{32}}{H_{22}H_{33}}\right) \frac{N_{1}}{H_{11}} = \frac{A_{33}}{\lambda_{1}H_{33}} - \frac{H_{32}}{H_{33}} \frac{A_{2}}{H_{32}} \left(\dots\right) - \frac{A_{1}}{\lambda_{1}H_{11}}$$

$$n_4 = \frac{N_4}{H_{44}} = \frac{A_4}{\lambda_4 H_{44}}$$

wobei $A_i = \lambda_i N_i$ die aus Teilchenzahlen N_i kommende Aktivität A_i bei Sammelende ist.

Die gesamte Aktivität bei Sammelende ist damit

$$A (t=0) = \sum_{i=i}^{4} A_i(t) = \sum_{i=i}^{4} \lambda_i N_i(=0)$$

Für eine über ein infinites i-mal kleines Zeitintervall gemittelte Impulsrate erhält man unter Berücksichtigung der einzelnen Wirkungsgrade:

$$J (t=0) = \sum_{i=i}^{\Delta} \eta_i \lambda_i N_i = \sum_{i=i}^{\Delta} J_i$$

Hieraus erhält man die aus den Teilchen N_i stammende Impulsrate $J_i \lambda_i n_i N_i$ Mit $\lambda_i N_i A_i$ wird die Varianz $\sigma_{\gamma i} = A_i \sigma_{\eta i}$ (da Pb einen β -Zerfall zeigt, ist $n_2=0$)

Für die Teilchendichten in Luft ergibt sich mit

$$n_{1} = \frac{J_{1}}{\lambda_{1} H_{11} \eta_{1}}$$

$$n_{2} = -\frac{H_{21} J_{1}}{H_{22} H_{11} \lambda_{1} \eta_{1}}$$

$$n_{3} = \frac{J_{3}}{H_{33} \lambda_{3} \eta_{3}} - (\frac{H_{31} H_{21} H_{32}}{H_{33} H_{22} H_{33}}) \frac{J_{1}}{\lambda_{1} H_{11} \eta_{1}}$$

$$n_{4} = \frac{J_{4}}{H_{44} \lambda_{4} \eta_{4}}$$

Damit wird die Varianz der Teilchendichten

$$\sigma_{n_{i}}^{2} = \sum_{i}^{d} \left(\frac{d_{n_{i}}}{d_{J_{i}}}\right)^{2} \sigma_{J_{i}}^{2} = \sum_{i}^{d} \left(\frac{d_{n_{i}}}{d_{J_{i}}}\right)^{2} A_{i}^{2} \sigma_{n_{i}}^{2}$$
$$= \sum_{i}^{d} \left(\frac{d_{n_{i}}}{d_{J_{i}}}\right)^{2} \frac{J_{i}^{2}}{n_{i}^{2}} \sigma_{n_{i}}^{2}$$

Für die einzelnen Teilchendichten erhält man damit:

$$\sigma_{n_1}^2 = \frac{J_1^2}{H_{11}^2 \lambda_1^2 \eta_1^2} \frac{\sigma_{\eta_1}^2}{\eta_1^2}$$

und hieraus

$$\frac{\sigma_{n_{1}}}{n_{1}} = \frac{\sigma_{\eta_{1}}}{\eta_{1}} \qquad \text{für }^{2\,1\,8}\text{Po}$$

analog für die weiteren Teilchendichten

$$\frac{\sigma_{n_{2}}}{n_{2}} = \frac{n_{1}}{n_{2}} \frac{\eta_{1}}{\eta_{1}} \qquad \text{für}^{214}\text{Pb}$$

$$\frac{\sigma_{n_{3}}}{n_{3}} = (\frac{\sigma_{n_{3}}}{\eta_{3}})^{2} + \frac{n_{1}^{2}}{n_{3}^{2}}(\frac{\eta_{1}}{\eta_{1}})^{2} \qquad \text{für}^{214}\text{Bi}$$

$$0,362^{2} \sigma_{n_{2}}^{2} \pm 0,638^{2} \sigma_{n_{2}}^{2}$$

$$\frac{\sigma_{n_4}}{n_4} = \frac{0,362 \sigma_{\eta_5} + 0,638 \sigma_{\eta_6}}{(0,362 \sigma_{\eta_5} + 0,638 \sigma_{\eta_6})^2} \quad \text{für } {}^{212}\text{Pb}$$

Es wird für Gesamtfehler 2 σ verwendet.

A2.1.5 Fehler aus Bestimmung von Sammelzeit, Sammelvolumen, Filterwirkungsgrad

Es sei $\zeta = \frac{V \eta_F}{\tau}$

V : durch Filter in τ : Sammelzeit (s) gesaugtes Luftvolumen $n_{\rm F}\text{: Filterwirkungsgrad}$

Für die Abweichung $\frac{\Delta \zeta}{\zeta}$ erhält man

$$\frac{\Delta \zeta}{\zeta} = \frac{\Delta V}{V} + \frac{\Delta \eta_{F}}{\eta_{F}} - \frac{\Delta \tau}{\tau}$$

mit (A.2.8) läßt sich die Auswirkung auf Teilchendichten ermitteln zu

$$\frac{\sigma_{n_{1}}}{n_{1}} = \frac{\sigma_{\zeta}}{\zeta}$$

$$\frac{\sigma_{n_{2}}}{n_{2}} = \{1 - \frac{H_{21}}{H_{22}}, \frac{n_{1}}{n_{2}}\}, \frac{\sigma_{\zeta}}{\zeta}$$

$$\frac{\sigma_{n_{3}}}{n_{3}} = \{1 - \frac{H_{32}}{H_{33}}, \frac{n_{2}}{n_{1}}, -(\frac{H_{31}}{H_{33}}, \frac{H_{21}}{H_{22}}, \frac{H_{32}}{H_{33}}), \frac{n_{1}}{n_{3}}, \frac{\sigma_{\zeta}}{\zeta}$$

$$\frac{\sigma_{n_{4}}}{n_{4}} = \frac{\sigma_{\zeta}}{\zeta}$$

A2.2 Schätzverfahren für Teilchendichten

A2.2.1 Schätzalgorithmus

Es soll ein Verfahren verwendet werden, das die ungleiche Präzision der Einzelmessungen berücksichtigt. Es bietet sich dafür das Generalized Least Square-Verfahren an, welches die Teilchendichten mit minimaler Teilchendichtenvarianz ermittelt.

Mit J = X n + e erhält man

$$\hat{\mathbf{n}} = (\underline{\mathbf{x}}^{\mathrm{T}} \underline{\mathbf{v}} \underline{\mathbf{e}}^{-1} \underline{\mathbf{x}})^{-1} \underline{\mathbf{x}}^{\mathrm{T}} \underline{\mathbf{v}} \underline{\mathbf{e}}^{-1} \underline{\mathbf{J}}$$

als Schätzformel für die Teilchendichten.

- Es bedeutet n: geschätzter Teilchendichtenvektor
 - X: Beobachtungsmatrix
 - e: Gleichungsfehlervektor
 - Ve: Gleichungsfehlerkovarianzmatrix
 - J: gemessener Impulsratenvektor

Die Beobachtungsmatrix X enthält in der i-ten Zeile die Koeffizienten aller gesuchten Parameter aus der i-ten Messung, in der j-ten Spalte die Koeffizienten des j-ten Parameters aus allen Messungen.

A2.2.2 Gleichungsfehlerkovarianzmatrix

Bei der m-ten Messung der Filteraktivität werden in der Zeit t $_m$ J $_m$ -Impulse gezählt; die Nulleffektmessung über die Meßzeit t $_o$ ergibt J $_o$ -Impulse.

Beim Zählen von J Impulsen beträgt die Streuung

$$\sigma^2 = J bzw. \sigma = \sqrt{J}$$

Die aus Filteraktivität stammende Impulsrate j
 erhält man aus gemessener Impulsrate j $_{\rm m}$ minus Nulleffekt
impulsrate j $_{\rm O}$

j: Nettoimpulsrate

Die Varianz der Nettoimpulsrate j erhält man mit dem Gauß'schen Fehlerfortpflanzungsgesetz /KRE 75/

$$\sigma = \left(\frac{\delta f}{\delta x_{1}}\right)^{2} \sigma_{x_{1}}^{2} + \dots + \left(\frac{\delta f}{\delta x_{K}}\right)^{2} \sigma_{x_{K}}^{2}$$
$$\sigma_{j} = \frac{1}{t_{m}} \sigma_{j_{m}}^{2} + \frac{1}{t_{o}} \sigma_{j_{o}}^{2}$$

Da durch Zählen verschieden hoher Impulszahlen verschiedene Präzision der Messungen vorliegt, erhält man eine unterschiedliche Varianz der Einzelmessung, d.h.

$$E \{ e_i \cdot e_K \} = \sigma_i^2 \delta_{iK}$$

$$E \{ \}: Erwartungswert$$

$$\delta_{iK}: Kroneckersymbol$$

wobei σ_i gegeben ist durch (A.3.2) und damit die Gleichungs-fehlerkovarianzmatrix <u>Ve</u> zu

$$Ve_{iK} = \sigma_{e_{iK}}^{2}$$
$$\sigma_{e_{iK}}^{2} = \sigma_{i}^{2} \delta_{iK}$$

mit

für das Element i,k

vorausgesetzt, \mathbf{e}_{i} , \mathbf{e}_{K} sind statistisch unabhängig, was hier gegeben ist.

A2.2.3 Parameterkovarianzmatrix, Schätzfehler

Als Gütemaß für das angewandte Schätzverfahren wird die Parametervarianz angesehen:

der Erwartungswert E { $(\underline{\hat{n}} - \underline{n})$ $(\underline{\hat{n}} - \underline{n})^{T}$ } = $V_{\underline{\hat{n}}}$

stellt die Parameterkovarianz dar.

- $\underline{J} = \underline{X}\hat{n} + \underline{e}$
- J: Impulsratenvektor
 - X: Beobachtungsmatrix
 - $\hat{\mathbf{n}}$: Parametervektor
 - e: Gleichungsfehler

wird

$$\underline{\hat{\mathbf{n}}} = (\underline{\mathbf{x}}^{\mathrm{T}} \ \underline{\mathbf{ve}}^{-1} \ \underline{\mathbf{x}})^{-1} \ \underline{\mathbf{x}}^{\mathrm{T}} \ \underline{\mathbf{ve}}^{-1} \ \underline{\mathbf{J}}$$
$$= \underline{\hat{\mathbf{n}}} + (\underline{\mathbf{x}}^{\mathrm{T}} \ \underline{\mathbf{ve}}^{-1} \ \underline{\mathbf{x}})^{+1} \ \underline{\mathbf{x}}^{\mathrm{T}} \ \underline{\mathbf{ve}}^{-1} \ \underline{\mathbf{e}}$$

und der Erwartungswert

$$E \{ (\underline{\hat{n}}-\underline{n}) (\underline{\hat{n}}-\underline{n})^{T} \} = (\underline{x}^{T} \underline{V}\underline{e}^{-1} \underline{x})^{-1} \underline{x}^{T} \underline{V}\underline{e}^{-1} \underline{E} \{ \underline{e} \underline{e}^{T} \} \underline{V}\underline{e}^{-1} \underline{x} (\underline{x}^{T} \underline{V}\underline{e}^{-1} \underline{x})^{-1};$$

mit $E \{ \underline{e} \underline{e}^{T} \} = \underline{V}\underline{e}$ erhält man

$$\underline{v}_{\underline{n}} = (\underline{x}^{\mathrm{T}} \underline{v} \underline{e}^{-1} \underline{x})^{-1}$$

Die Parameterkovarianzatrix hat folgendes Aussehen:

$$V_{n_{i,j}} = E \{ (\hat{n}_{i} - n_{i}) (\hat{n}_{j} - n_{j}) \} = s_{ij}^{2}$$

Die Hauptdiagonale enthält also die Parametervarianzen, die Nebendiagonalen die Parameterkovarianzen.

Die Varianzen $\sigma_{n_{\uparrow}}$ der Teilchendichten sind also

$$V_{n_{ij}} \delta_{ij} = \sigma_{n_{i}}^2$$

σ_n: Varianzen der Teilchendichten δⁱ: Kronecker-Symbol j

Schätzfehler für Teilchendichte n_i :

in Teilchen pro m³

σ_n

in Prozent

α_n <u>n</u>i

Es wird zur Ermittlung des Gesamtfehlers 20 eingesetzt.

A2.2.4 Nachweisgrenzen

Nimmt man an, daß bei t_i nur noch aus Th B folgende Aktivität vorhanden ist, läßt sich mit

 $\sigma_{o} = 2 \frac{j_{o}}{t_{o}}$

die Nachweisgrenze für Th B auf dem Filter berechnen.

Man erhält damit

 $\sigma_{\rm Th B} = \sigma_{\rm O}$

als 20 Nachweisgrenze für Th B auf dem Filter

$$A_{3N} = 2\sigma_{Th B}$$

Rechnet man mit dieser Nachweisgrenze und der Halbwertszeit von Th B (10,6 h) auf eine Zeit t zurück, wobei t so gewählt wird, daß der Aktivitätsanteil aus Ra A praktisch vernachlässigbar ist, so erhält man die Nachweisgrenze für Ra B, C mit der mittleren Halbwertszeit von 23,3 min.

$$2\sigma'_{\text{Th B}} = 2\sigma_{\text{Th B}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Th B}}(t_2 - t_1)}$$

als Ra B, C Nachweisgrenze auf Filter erhält man dann

$$A_{2N} = 2\sigma_{Ra B, C} = 2\sigma_{Th B} + \sigma_{o}^{2}$$

In analoger Weise erhält man für Ra A:

$$A_{IN} = 2_{Ra} A = 2_{Ra}^{2} B_{a}^{2} B_{a}^{2} C_{0}^{+} O^{+} Th_{B}^{2}$$

mit

$$\sigma'_{\text{Ra B, C}} = \sigma_{\text{Ra B, C}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Ra B, C}}} (t_3 - t_2)$$

$$\sigma''_{\text{Th B}} = \sigma_{\text{Th B}} \cdot e^{-\lambda_{\text{Th B}}(t_3 - t_1)}$$

Für die Berechnung der Nachweisgrenzen werden folgende Zeiten angenommen:

> $t_1 = 4$ h, nur Th B, C $t_2 = 30$ min, Ra B, C und Th B, C $t_3 = 0$ (Sammelende), alle Folgeprodukte

Der Sammelvorgang wurde beschrieben durch (A.2.7)

$$N (t =) = \underline{H} \underline{n}$$

Nachweisgrenze für ²¹⁸Po

Im Gleichungssystem für Sammelvorgang (A.4.4) seien alle Teilchendichten $n_i = 0$, nur $n_{218}P_0 \neq 0$. Damit erhält man für die Aktivität auf dem Filter bei Sammelende:

$$A_{1N} = \lambda_1 n_1 N_1 + \lambda_3 n_3 N_3$$

und mit (A.4.3) und (A.2.7) die Nachweisgrenze für ²¹⁸Po

$$a_{1N} = \frac{\lambda_1 A_{1N}}{(\lambda_1 n_1 H_{11} + \lambda_3 n_4 H_{31})}$$

Bei der Ermittlung der Nachweisgrenze für ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi ist folgende Annahme nötig: das Verhältnis der Nachweisgrenze a_{N214}Pb : a_{N214}Bi

verhält sich wie die spezifischen Aktivitäten in Luft a_{214Pb} : a₂₁₄Bi

Nur so lassen sich die Einzelnachweisgrenzen aus (A.4.2) ermitteln.

Es sei
$$A_{2N}(\tau) = \lambda_3 n_4 N_3$$

mit

 $\frac{a_2}{a_3} = b = \frac{a_{2N}}{a_{3N}}$ erhält man die Nachweisgrenzen

$$a_{3N} = \frac{A_{2N}}{37 (H_{32} b \lambda_3 / \lambda_2 + H_{33}) n_4} \qquad für^{214}Bi$$

und

$$a_{2N} = b a_{3N}$$
 für ²¹⁴Pb

Analog wie bei ²¹⁸Po erhält man für ²¹²Pb/²¹²Bi

 $a_{5N} = \frac{A_{3N}}{37 \{ n_6 \cdot 0, 362 + n_7 0, 638 \} H_{44}}$

Die Nachweisgrenze einer Messung hängt von den jeweils gemessenen Nulleffekten ab. Diese sind nicht konstant, sondern hängen u.a. auch ab von der Radon-Konzentration der Luft, da die Detektorfolie trotz Kupferabdeckung als elektrostatischer Sammler - z.B. beim Einlegen des Filters - wirken kann.

| Tab. A.Z.Z Nachweisgrenze | Tab. | A.2.2 | Nachweisgrenze |
|---------------------------|------|-------|----------------|
|---------------------------|------|-------|----------------|

| | Pot. g-E konzentr in Luft | hergie- ation | entsprec wichtsko Folgepro | hende Gleichge- nzentration mit dukten | |
|---------------------|---------------------------------|---------------------|----------------------------------|--|-------------------|
| Nachweis- grenze | gesamt | aus Rn — 222 | aus Rn — 220 | Rn-222 | Rn-220 |
| | 10 ⁻³ WL | 10 ⁻³ WL | 10 ⁻³ WL | Bqm ⁻³ | Bqm ⁻³ |
| mittlere | 0,5 | 0,07 | 0,43 | 0,3 | 0,01 |
| beste erreichte | 0,35 | 0,045 | 0,30 | 0,2 | 0,1 |

A2.2.5 Vergleichsmessungen mit der Universität Gießen 1978/79

Teilnehmer

- a) Kernforschungszentrum Karlsruhe, Abteilung Strahlenschutz
- b) Universität Gießen, Institut für Biophysik

Ziel der Vergleichsmessungen

Es sollte ein Kalibrierungsvergleich der von den verschiedenen Gruppen benutzten unterschiedlichen Geräte durchgeführt werden. Für diesen Zweck erschienen uns mehrere sog. "Punktmessungen" mit den Geräten gleichzeitig als sinnvoll. Darüberhinaus war nur die Gießener Anlage für eine kontinuierliche Messung geeignet. Für den Vergleich der Ansprechwahrscheinlichkeiten reicht es eigentlich aus, nur die Konzentration der kurzlebigen Folgeprodukte des Radon-222 zu bestimmen, jedoch sind auch die Folgeprodukte des Thoron (Rn-220) zur Auswertung herangezogen worden.

Methoden und Geräte

Die von beiden Gruppen benutzten Meßanlagen sind in ihrem Betrieb und ihrer Funktion grundsätzlich unterschiedlich. Zur Bestimmung der Konzentrationen der kurzlebigen Folgeprodukte von Radon und Thoron der Raum- und Freiluft wird von der Universität Gießen die alphaspektrometrische Analyse einer Filterprobe benutzt (Duggan, M.J., D.M. Howell, 1968, J. Appl. Radiat. Isot. 19, 865-870). Bei der verkürzten Methode wird die zu untersuchende Luft 20 min lang bei einem Luftdurchsatz von 22,5 1/min auf einem Membranfilter (effektiver Durchmesser: 21,5 mm, 1,2 µm Porenweite) gesammelt (siehe auch Abb. A2.3). Die deponierte Alphaaktivität wird mit Hilfe eines Oberflächensperrschichtdetektors (300 mm² aktive Fläche) während des Sammelns und in einem Intervall von 0 bis 20 und von 20 bis 40 min nach Sammelende mittels Vielkanalanalysator registriert(siehe Abb. A2.2). Mit der Methode der Simultangleichungen wurde unter Verwendung der Zerfälle von RaA und RaC' im ersten Intervall und von RaC' im dritten Intervall die Nuklidkonzentrationen von RaA (Po-218), RaB(Pb-214) und RaC(Bi-214) bestimmt.

Die Konzentration von ThB(Pb-212) wurde unter Annahme eines radioaktiven Gleichgewichts zwischen ThB und ThC' aus den Zerfällen von ThC' zwischen Sammelende und 49 min danach ermittelt. Die gesamte Messung benötigt damit 60 min.

Die Ansprechwahrscheinlichkeit des Systems wurde geometrisch berechnet (elliptische Integrale) und mit einem Teststrahler geprüft (Am-241). Danach beträgt die Ausbeute 17 %.

Durchführung der Vergleichsmessung

Im Strahlenzentrum der Universität Gießen stand ein Lagerraum im 4. Stock des Hauses zur Verfügung. Die Radonkonzentration (Rn-222) wurde mit einem kontinuierlichen Verfahren verfolgt. Im Laufe des Vormittags wurden dort von beiden Gruppen nacheinander "Punkt"-Messungen durchgeführt. Am Nachmittag wurden die Messungen auf dem Dach des Hauses (Freiluft) weitergeführt. Ein zweiter Vergleich wurde in einem Wohnhaus bei Karlsruhe durchgeführt. Die Ergebnisse mit Angabe der statistischen Meßfehler sind in Tabelle 1 bis 3 zusammengestellt.

Diskussion der Ergebnisse

Die Meßergebnisse beider Anlagen stimmen im Bereich der Fehlergrenzen recht gut überein. Die Abweichung des Meßwertes von 11⁰⁰ (Gruppe b) von dem vergleichbaren Meßwert um 11³⁰ (Gruppe a) kommt durch die zeitliche Verschiebung zustande.

Wie aus den begleitenden Radonmessungen ersichtlich ist, war in der Zwischenzeit durch die Installation der zusätzlichen Geräte das Konzentrationsniveau abgesunken.

Bei den Ergebnissen der Gruppe a im Lagerraum erscheinen darüberhinaus die Werte von Bi-214 gegenüber denen der Gruppe b etwas zu niedrig (12⁰⁰-Wert). Hinsichtlich der Nachweisgrenze beider Meßmethoden liegen, abgesehen vom RaA bei der Gruppe a, beide Anlagen in derselben Größenordnung. Gruppe b kommt allerdings insgesamt pro Messung mit weniger Zeit aus, da diese Methode durch die Spektrometrie direkter ist.

149



Abb. A2.1: Meßanlage der Gruppe a (Karlsruhe)

Abb. A2.2: Meßanlage der Gruppe b (Gießen) mit Bestaubungs/ Meßkopf, Vorverstärker und Vielkanalanalysator

Abb. A2.3: Bestaubungs/ Meßkopf der Anlage von Gruppe b

Tabelle A2.3 Messungen Gruppe a (Karlsruhe) Ergebnisse der Vergleichsmessung vom 27.11.1978 am Institut für Biophysik Universität Gießen, Strahlenzentrum spez. Aktivitätskonzentration in pCi 1⁻¹ Bi 214 Filter Po 218 Pb 214 Pb 212/Bi 212 Zeit Nr. 1 11.30 0,33<u>+</u>0,09 0,20+0,03 0,10+0,033 0,03±0,006 2 12.00 0,36+0,10 0,19+0,034 0,09+0,034 0,03±0,006 0,02+0,008 0,02+0,01 3 15.00 +) $0,002\pm0,001$ +) kleiner Nachweisgrenze, Fehler größer 100 % Dachgeschoß (innen) Filter 1,2 auf dem Dach (außen) 3 Fehlerangabe: 2 σ - Fehler Nachweisgrenze in pCi 1^{-1} Po 218 Pb 214 Bi 214 Pb 212/Bi 212

0,001

0,025

0,008

0,010

Tabelle A2.4 Messungen Gruppe b (Gießen)

Ergebnisse der Vergleichsmessungen vom 27.11.1978

| | | s | pezifische Ak | tivitätskonze | entrationen | (pCi/l) |
|--------------|-------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|----------------------|
| Ort | Zeit | Rn | RaA | RaB | RaC | ThB/C |
| age | (h) | | | | | |
| ы Ц | 9.00 | 0,56 <u>+</u> 0,04 | - | - | - | - |
| 4 | 10.00 | 0,57 <u>+</u> 0,04 | 0,49 <u>+</u> 0,03 | 0,32+0,02 | 0,17 <u>+</u> 0,02 | 0,024 <u>+</u> 0,002 |
| aum | 11.00 | 0,55 <u>+</u> 0,04 | 0,45 <u>+</u> 0,02 | 0,29 <u>+</u> 0,02 | 0,19 <u>+</u> 0,02 | 0,024 <u>+</u> 0,002 |
| к К | 12.00 | 0,40+0,03 | 0,35 <u>+</u> 0,02 | 0,18 <u>+</u> 0,01 | 0,14 <u>+</u> 0,01 | 0,016 <u>+</u> 0,001 |
| age | 13.00 | 0,39 <u>+</u> 0,03 | _ | - | - | - |
| Ä | 14.00 | - | - | | - | - |
| t) | • | | | | | |
| μ | 15.00 | - | 0,05 <u>+</u> 0,01 | 0,03+0,01 | 0,02 <u>+</u> 0,01 | 0,002 <u>+</u> 0,001 |
| eil e | 16.00 | 0,10 <u>+</u> 0,02 | 0,05 <u>+</u> 0,01 | 0,04 <u>+</u> 0,01 | 0,02 <u>+</u> 0,01 | 0,002 <u>+</u> 0,001 |
| Dac. (Fr. | 17.00 | 0,07 <u>+</u> 0,02 | - | - | - | _ |

Nachweisgrenzen in pCi/l +

| Rn-222 | RaA | RaB | RaC | ThB/C | ⁺ gesamter Meßaufwand 1 h |
|--------|------|------|------|-------|---|
| 0.02 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | 0.002 | Vertrauensgrenze 1 σ , statistischer Meßfehler ca. |
| •,•= | -, | ., | -, | -, | 30 % angenommen. |

Tabelle A2.5 Ergebnisse: Vergleichsmessung in Linkenheim am 23.02.1979

a: Karlsruhe

b: Gießen

Zeit

Po-218 1,565+0,313 а 1,400+0,303 1,967±0,395 0,036+0,019 pCi 1⁻¹ b 1,721+0,054 1,697<u>+</u>0,054 1,916+0,057 0,031+0,010 Pb-214 1,134+0,077 1,110+0,112 1,474+0,107 0,037+0,008 а pCi l-1 $0,941\pm0,046$ 1,042+0,048 0,017<u>+</u>0,007 b 1,031+0,048 Bi-214 0,360+0,074 $0,361\pm0,112$ 0,420+0,106 0,014+0,011 а pCi l^{-1 b} 1,043+0,018 0,869+0,034 $0,946\pm0,035$ 0,030+0,006 Pb-212 Bi-212 a 0,0196±0,0042 0,0192±0,0042 0,0333±0,0042 0,0016 0,0008 pCi 1^{-1} b 0,018±0,002 0,017+0,002 0,014+0,002

A 3 Logarithmische Normalverteilung

In diesem Anhang werden die wichtigsten Größen der Normalverteilung und der logarithmischen Normalverteilung gegenübergestellt^{*}.

Die Normalverteilung (Abb. A2.1) ist eine symmetrische Verteilung, die durch den Mittelwert und die Standardabweichung charakterisiert wird. Mittelwert, Medianwert (50 %-Wert) und Häufigkeitsmaximum (Dichtemittel) sind identisch.



Mittelwert: $\overline{x} = \frac{1}{n} \sum_{i} f_{i} x_{i}$ (50 % Wert)

Standard-
abweichung
$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n-1} \left[\sum_{i} f_{i} x_{i}^{2} - \left(\sum_{i} f_{i} x_{i} \right)^{2} \right]}$$

Mittelwert (\equiv Medianwert \equiv Dichtemittel)

Abb. A3.1: Normalverteilung

* übernommen aus L.Sachs: Angewandte Statistik, 1984, Springer Verlag Berlin Die logarithmische Normalverteilung ist eine schiefe Verteilung, die durch den Medianwert (50 %-Wert) und den Streufaktor charakterisiert wird. Der Streufaktor, auch als geometrische Standardabweichung bezeichnet, ist eine dimensionslose Größe und immer größer als 1. Mittelwert, Medianwert und Dichtemittel unterscheiden sich (Abb. A2.2).



$$y = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \cdot \frac{1}{x} \cdot \exp\left(-\frac{(\ln x - \mu)^2}{2\sigma^2}\right) \quad \text{für } x > 0$$

Medianwert:
$$\widetilde{\mathbf{x}} = \exp\left(\frac{1}{n}\sum_{i}f_{i}\ln x_{i}\right)$$

(50 % - Wert)

Streufaktor
$$\sigma_{g} = \exp \sqrt{\frac{1}{n-1} \left(\sum_{i} f_{i} (\ln x_{i})^{2} - (\sum_{i} f_{i} \ln x_{i})^{2} \right)}$$

Mittelwert:
$$\overline{\mathbf{x}} = \exp\left[\frac{1}{n}\sum_{i}f_{i}\ln x_{i} + \frac{1,1513}{n-1}\left\{\sum_{i}f_{i}(\ln x_{i})^{2} - (\sum_{i}f_{i}\ln x_{i})^{2}\right\}\right]$$

Abb. A3.2: Logarithmische Normalverteilung

Bei der Beurteilung von Stichproben wird häufig Bezug genommen auf die Bereiche

> Mittelwert <u>+</u> Standardabweichung Mittelwert <u>+</u> 2x Standardabweichung

um die zentralen 68,3 %, 95 %-Bereiche zu beschreiben. In Abb. A2.3 sind die Formeln zur Ermittlung dieser Bereiche für beide Verteilungen gegenübergestellt.

FLÄCHENANTEILE DER STANDARDNORMALVERTEILUNG



| Zentrale Masse | Normalverteilung | logarithmische Normalverteilung |
|----------------|--|---|
| 68,3 % | $\overline{\mathbf{x}} - \boldsymbol{\sigma} \dots \overline{\mathbf{x}} + \boldsymbol{\sigma}$ | $\frac{\widetilde{\mathbf{x}}}{\sigma_{\mathbf{g}}} \dots \widetilde{\mathbf{x}} \sigma_{\mathbf{g}}$ |
| 95,5 % | $\overline{\mathbf{x}} - 2\sigma \dots \overline{\mathbf{x}} + 2\sigma$ | $\frac{\widetilde{\mathbf{x}}}{\sigma_{\mathbf{g}}^{2}} \dots \widetilde{\mathbf{x}} \sigma_{\mathbf{g}}^{2}$ |
| 99,7 % | $\overline{\mathbf{x}} - 3\sigma \dots \overline{\mathbf{x}} + 3\sigma$ | $\frac{\widetilde{\mathbf{x}}}{\sigma_{\mathbf{g}}^{3}} \dots \widetilde{\mathbf{x}} \sigma_{\mathbf{g}}^{3}$ |

<u>Abb. A3.3</u>: Vergleich wichtiger Parameter:

Normalverteilung und 'logarithmische Normalverteilung

A 4 Fragebogen aus den Erhebungsmessungen

- (1) Angaben zur Wohnung
- (2) Angaben zum untersuchten Raum
- (3) Angaben zu Messungen im Freien

Erhebungen zum Untersuchungsprogramm

"Radon in Wohn- und Aufenthaltsräumen"

Angaben zur Wohnung

Bitte vollständig ausfüllen und nur sichere Angaben eintragen ()) oder ankreuzen (). Die Handhabung und Verarbeitung der Daten erfolgt gemäß dem Bundesdatenschutzgesetz. Die gespeicherten Informationen werden auf Wunsch mitgeteilt.



Sonstige Bemerkungen:



Angaben zu dem jeweils untersuchten Raum



| keine sichere Angabe: | 00 | Beton: | 07 | Kunststoff: |
|----------------------------|-------|--------------------------|----|----------------------------|
| Ziegel(auch Brennziegel |): 01 | Klinker,Keramik,Fliesen: | 08 | Metall: |
| Kalksandstein: | 02 | Gasbeton(Blähbeton): | 09 | Putz: |
| Zementgebundene Stein | e | Lehm(auch mit Holz): | 10 | Putz,Farbe: |
| -mit Bimszuschlag: | 03 | Holz: | 11 | Putz,Tapete: |
| -mit Splittzuschlag: | 04 | Naturstein: | 12 | Putz,Tapete,Farbe: |
| –mit Ziegelsplittzuschla | ıg:05 | Gips(auch Gipskarton): | 13 | Gipskarton, Tapete, Farbe: |
| -mit Schlackenzuschlag: 06 | | Zementasbest: | 14 | Teppich: |
| | | | | Farbe: |



Datensatzkennung

A 5 Ergebnisse in Häusern: Gesamtüberblick

| Klasse | Anzahl der Wohnungen | Medianwert (Bq/m ³) | ďg | Frakt 95 % | ile (B 99 % | q/m ³) Maximum |
|---|-----------------------------|------------------------------------|--------------------------|------------------------|--------------------------|-------------------------------|
| Wohnungen insgesamt | 5 970 | 40 | 1,8 | 109 | 218 | 1111 |
| Aufgliederung <u>nach</u> : | | | | | | |
| Bundesland: | | | | | | |
| Schleswig- Holstein Hamburg Niedersachsen Bremen | 241 160 860 41 | 40 27 37 29 | 1,8 1,7 1,7 1,7 | 103 66 80 72 | 160 102 156 140 | 269 127 405 140 |
| Nordrhein- Westfalen Hessen Rheinland-Pfalz | 1360 473 332 | 37 43 57 | 1,6 1,8 1,7 | 84 114 132 | 152 221 229 | 588 388 1111 |
| Baden- Württemberg Bayern Saarland Berlin | 916 1198 121 268 | 42 46 42 31 | 2,0 1,9 1,6 1,7 | 143 132 79 72 | 344 280 108 109 | 924 657 127 244 |
| Hausart: | | | | | | |
| Einfamilienhaus Zweifamilienhaus Mehrfamilienhaus Hochhaus | 2754 1319 1580 215 | 43 43 35 33 | 1,8 1,8 1,8 1,6 | 121 114 84 73 | 230 225 153 86 | 1111 657 782 95 |
| Bauweise: | | | | | | |
| Massivhaus Fachwerkhaus Fertighaus (Leichtbau) | 5458 184 213 | 41 50 29 | 1,8 1,8 1,8 | 108 143 70 | 217 235 113 | 1111 240 539 |
| Baujahr: | | | | | | |
| vor 1900 1901–1948 nach 1948 | 344 858 4676 | 50 39 40 | 2,0 1,9 1,8 | 163 116 101 | 404 235 202 | 640 1111 924 |
| Keller: | | | | | | |
| vollunterkellert teilweise | 4501 | 38 | 1,7 | 92 | 157 | 1111 |
| unterkellert nicht unterkellert | 1081 322 | 50 43 | 2,0 2,0 | 171 148 | 348 372 | 657 782 |

160



. Sonstige Bemerkungen:



(Fortsetzung):

| Klasse | Anzahl der Wohnungen | Medianwert (Bq/m ³) | ୪ ଟ୍ର | Frak 95 % | tile 99 | (Bq/m ³) % Maximum |
|--------------------------------|-------------------------|------------------------------------|--------------------|--------------|------------|-----------------------------------|
| Heizungssystem: | | | | | | |
| Konvektionsheizung | 4393 | 39 | 1,8 | 109 | 214 | 657 |
| Fußbodenheizung | 325 | 45 | 1,7 | 114 | 170 | 296 |
| Einzelofenheizung | 635 | 43 | 1,9 | 132 | 240 | 1111 |
| warmluitheizung | 21 | 43 115 | 1,9 | 140 | 232 | 290 |
| Nachtspeicherofen | 208 | 42 | 1.8 | 111 | 176 | 184 |
| . . | | | | | | |
| Fenster: | | | | | | |
| Einscheidenienster | Q 1Q | 27 | 1 Q | 00 | 170 | lion |
| Finscheihenfenster | 010 | 51 | 1,0 | 99 | 172 | 405 |
| mit Dichtung | 110 | 42 | 1.8 | 123 | 152 | 166 |
| Isolierglasfenster | | | .,. | .=5 | | 100 |
| ohne Dichtung | 1088 | 40 | 1,8 | 110 | 239 | 657 |
| Isolierglasfenster | | | | | | |
| mit Dichtung | 2357 | 41 | 1,8 | 107 | 209 | 1111 |
| Doppelfenster | 4400 | 11.4 | 4 0 | 400 | 0.75 | 700 |
| Onne Dichtung | 1122 | 41 | 1,9 | 120 | 211 | 782 |
| mit Dichtung | 348 | 40 | 1.7 | 111 | 182 | 280 |
| mit Dichoung | 510 | 10 | | | 102 | 200 |
| Wand/Mauerwerk ^{*)} : | | | | | | _ |
| Ziegel | 2229 | 40 | 1,8 | 111 | 221 | 657 |
| Kalksandstein | 786 | - 37 | 1,7 | 96 | 170 | 448 |
| Bimssteine | 960 | 47 | 1,8 | 122 | 212 | 599 |
| Schlackensteine | 20 5/1 | 37 | 1,9 | 82 | 540 | 540 6/10 |
| Beton | 349 | 38 | 1.8 | 94 | 162 | 613 |
| Gasbeton | 276 | 40 | 1,8 | 101 | 252 | 460 |
| Lehm (Holz) | 43 | 57 | 1,8 | 124 | 176 | 176 |
| Holz | 150 | 29 | 1,8 | 68 | 156 | 539 |
| Naturstein | 95 | 61 | 2,4 | 235 | 1111 | 1111 |
| Gips | 76 | 34 | 1,8 | 126 | 147 | 147 |
| Etage+: | | | | | | |
| Keller | 1206 | 52 | 2,3 | 223 | 418 | 675 |
| Erdgeschoß | 3841 | 43 | 1,9 | 125 | 283 | 2312 |
| 1. Etage | 2729 | 38 | 1,8 | 103 | 172 | 968 |
| 2. Etage | 621 1014 | 33 | 1,7 | 84 | 129 | 238 |
| noner | 440 | 33 | 1,7 | 13 | 104 | 140 |
| Standort ⁺⁾ : | | | | | | |
| Schlafzimmer | 4693 | 37 | 1,8 | 101 | 185 | 968 |
| Wohnzimmer | 5374 | 41 | 1,9 | 119 | 243 | 1254 |
| Küche | 1316 | 37 | 1,9 | 101 | 197 | 1396 |
| Kinderzimmer | 421 | 37 | 1,8 | 99 | 189 | 274 |
| Netterbaug (NG) | 1020 102 | ライ 1川 | ۲ ,4 1 0 | 221 | 203 | 1019 116 |
| neuternaus (no) | 102 | 17 | 7,7 | 54 | 00 | 110 |

*)

unter 10 Messungen pro Klasse sind ignoriert bei der Auswertung wurden die zeitlichen Mittelwerte der jeweiligen +) Einzelmessungen zugrundegelegt

A 6 Resultate auf Kreisebene

Spalte 1: Kreiskennziffer
Spalte 2: Bezeichnung des Kreises
Spalte 3: Anzahl der erfaßten Wohnungen
Spalte 4: Kreismedianwert in Bq/m³

SCHLESWIG-HOLSTEIN 1001 FLENSBURG, STADT 1002 KIEL, LANDESHAUPTSTADT 1003 LUEBECK, HANSESTADT 1004 NEUMUENSTER, STADT 1051 DITHMARSCHEN 1053 HERZOGTUM LAUENBURG 1054 NORDERIESLAND 1055 OSTHOLSTEIN 1056 PINNEBERG -6 1057 PLOEN 1058 RENDSBURG-ECKERNFOERDE 1059 SCHLESWIG-FLENSBURG - 3 1060 SEGEBERG 1061 STEINBURG 1062 STORMARN HAMBURG, FREIE UND HANSESTADT NIEDERSACHSEN BRAUNSCHWEIG, REG. = BEZ. 3101 BRAUNSCHWEIG, STADT 3102 SALZGITTER, STADT 3103 WOLFSBURG, STADT 3151 GIFHORN 3152 GOETTINGEN 3153 GOSLAR 3154 HELMSTEDT 3155 NORTHEIM 3156 OSTERODE AM HARZ 3157 PEINE - 8 3158 WOLFENBUETTEL HANNOVER, REG.-BEZ. 3201 HANNOVER, STADT 3251 DIEPHOLZ 3252 HAMELN-PYRMONT 3253 HANNOVER, LAND 3254 HILDESHEIM 3255 HOLZMINDEN 3256 NIENBURG (WESER) 3257 SCHAUMBURG LUFNEBURG, REG.-BEZ.

3351, CELLE 3352 CUXHAVEN 3353 HARBURG 3354 LUECHON-DANNENBERG 3355 LUENEBURG 3356 OSTERHOLZ 3357 ROTENBURG (WUEMME) 3358 SOLTAU-FALLINGBOSTEL 3359 STADE 3360 UELZEN 3361 VERDEN

mi -

WESER-EMS, REG.-BE7.

| 3401 3402 3403 3404 3405 3451 3452 3455 3456 3455 3456 3457 3458 3459 3460 3461 3462 | DELMENHORST, STADT EMDEN, STADT OLDENBURG (OLDENBURG), STADT OSNABRUECK, STADT WILHELMSHAVEN, STADT AMMERLAND AURICH CLOPPENBURG EMSLAND FRIESLAND GRAFSCHAFT BENTHEIM LEER OLDENBURG (OLDENBURG) OSNABRUECK VECHTA WESERMARSCH WITTMUND | 0 4 7 25 0 11 20 5 32 9 26 11 6 25 8 0 8 | () 33 20 33 0 32 27 44 31 24 46 32 35 37 34 0 28 |
|--|--|--|--|
| BREM | EN,LAND | | |
| | | | |
| 4011 | BREMEN, FREIE HANSESTADT | 19 | 29 |
| 4012 | BREMERHAVEN, STADT | 22 | 29 |
| HORD | RHEIN-WESTFALEN | | |
| DUES | SELDORF, REGBEZ. | | |
| | | | |
| 5111 | DHESSELDORF, STADT | 23 | 34 |
| 5112 | DUISBURG, STADT | 17 | 56 |
| 5113 | ESSEN, STADT | 27 | 34 |
| 5114 | KREFELD, STADT | 12 | 29 |
| 5116 | MOFNCHENGLADBACH, STADT | 25 | 44 |
| 5117 | MUELHEIM A.D.RUHR,STADI | 27 | 42 |
| 5119 | OBERHAUSEN, STADT | 26 | 41 |
| 5120 | REMSCHEID, STADI | 22 | 49 |
| 2215 | SOLINGEN, STADT | 25 | 42 |
| 5124 | WUPPERFAL, STADT | 22 | 36 |
| 5154 | KLEVE | 2.6 | 41 |
| 5158 | METTMANN | 24 | 43 |
| 5162 | NEUSS | 21 | 37 |
| 5166 | VIERSEN | 25 | 35 |
| 517() | WFSEL | 21 | 33 |
| KOEL | N,REGBEZ, | | |
| 5313 | AACHEN, STADT | 23 | 27 |
| 5314 | BONN, STADT | 22 | 40 |
| 5315 | KOELN, STADT | 33 | 41 |
| 5316 | LEVERKUSEN, STADT | 0 | n |
| 5354 | AACHEN, LAND | 28 | 34 |
| 5358 | DUEREN | 104 | 34 |
| 5362 | ERFTKREIS | 29 | 51 |
| 5366 | EUSKIRCHEN | 25 | 51 |
| 5370 | HEINSBERG | 24 | 36 |
| 5374 | OBERBERGISCHER KREIS | 26 | 51 |
| 5378 | RHEINISCH-BERGISCHER KREIS | 55 | 38 |
| 5382 | RHEIN-SIEG-KREIS | 33 | 48 |

| 6533 LIMBURG-WEILBURG 6534 MARBURG-BIFDENKOPF 6535 VOGELSBERGKREIS | 13 13 17 | 54 32 26 |
|--|----------------|----------------|
| KASSEL, REG DEZ. | | |
| 6611 KASSEL 6631 FULDA | 7 20 | 33 59 |
| 6632 HERSFELD-ROTENBURG 6633 KASSEL | 4 21 | 26 62 |
| 6634 SCHWALM-EDER-KREIS | 12 | 41 |
| 6636 WALDECK-FRANKENBERG 6636 WERPA-MFISSNER-KREIS | 12 14 | 48 52 |
| RHETNLAND-PFALZ | | |
| KOBLENZ, REGBEZ. | | |
| 7111 KOBLENZ, KREISFREIE STADT | 8 | 58 |
| 7131 AHRWEILER | 3 | 54 |
| 7132 ALTENKIRCHEN (WESTERWALD) | 3 | 66 40 |
| 7134 BIRKENFELD | 11 | 76 |
| 7135 COCHEM-ZELL | 14 | 71 |
| 7137 MAYEN-KORLENZ | 18 | 68 |
| 7138 NEUNIED | 19 | 50 |
| 7140 RHEIN-HUNSRUECK-KREIS | 17 | 78 |
| 7141 RHEIN-LAHN-KREIS 7143 WESTERWALDKREIS | 17 | 60 62 |
| TRIER, REGBEZ. | | |
| 7211 TRIER, KREISFREIE STADT | 3 | 43 |
| 7231 BERNKASTEL-WITTLICH | 0 | 0 |
| 7232 BITRURG-PRUEM | 20 | 61 4 7 |
| 7235 TRIER-SAARBURG | 13 | 24 |
| RHEINHESSEN=PEALZ_REG_=BEZ_ | | |
| 7311 FRANKENTHAL (PFAL7) KRETSERETE STADT | 12 | 41 |
| 7312 KAISERSLAUTERN, KREISFPEIE STADT | 2 | 74 |
| 7313 LANDAU IN DER PFALZ, KREISFREIE STADT | 12 | 64 |
| 7314 LUDWIGSHAFEN AM RHEIN, KREISFR. STADT | 8 | 63 |
| 7315 MAINZ, KREISFREIE STADT | 9 | 45 |
| 7317 DIRMAGENG KREISEKE STADT | 14 | 44 |
| 7318 SPEYER KREISFREIE STADT | 9 | 56 |
| 7319 WORMS, KREISFRETE STADT | 1 | 132 |
| 7320 ZWEIBRUECKEN, KREISFREIF STADT | 1 | 5.6 |
| 7331 ALZEY-WORMS | 12 | 64 |
| TODE HAV VUERKHEIM 7333 DANNEPSRERGKPETS | 18 |) כ 11 ח |
| 7334 GERMERSHEIM | 10 | 50 |
| 7335 KAISERSLAUTERN, LAND | 1 | 48 |
| 7336 KUSEL | 14 | 92 |
| 7337 SUEDLICHE WEINSTRASSE | 13 | 52 |
| 7338 LUDWLGSHAFEN 2339 MATHZ-RTNGEN | ל ח | 62 0 |
| 7340 PIRMASENS,LAND | 4 | 3.3 |

STUTTGART, PEG. - BEZ.

| 8111 | STUTTGART I ANDESHAUPTSTADT | 13 | 28 |
|-------|--|-----------|------|
| 8115 | BOERLINGEN | 48 | 35 |
| 8116 | ESSLINGEN | 28 | 38 |
| 8117 | COEDOTNEEN | 18 | 37 |
| 0110 | | יט מיל | 51 |
| 0110 | DEME-NUDE KOFIC | 2.0 | 40 |
| 0117 | KEMS=MUKK=KKEIS | 1 | 14.5 |
| 8121 | HELLBRONN, STADI | 1 | 25 |
| 8125 | HEILBRONN | .39 | 38 |
| 8126 | HOHENLOHEKREIS | 1 | 32 |
| 8127 | SCHWAEBISCH HALL | 27 | 4 () |
| 8178 | MAIN-TAUBER-KREIS | 28 | 60 |
| 8135 | HEIDENHEIN | 30 | 40 |
| 8136 | OSTALBKREIS | 54 | 43 |
| KARL | SRUHE,REGBEZ. | | |
| 9211 | | 0 | 0 |
| 0211 | | 75 | 20 |
| 0616 | KARLSRUME, STADT | 35 | 29 |
| 0212 | KARLSRUHE, LAND | 44 | 46. |
| 0120 | | l A | 51 |
| 8221 | HEIDELBERG, STADT | 1 | 42 |
| 8222 | MANNHEIM, UNIVERSITAETSSTADT | 2 | 28 |
| 8225 | NECKAR-ODENWALD-KREIS | 52 | 54 |
| 8226 | RHEIN-NECKAR-KREIS | 1 | 37 |
| 8231 | PFOPZHEIM, STADT | 4 | 27 |
| 8235 | CALW | 36 | 35 |
| 8236 | ENZKREIS | 12 | 34 |
| 8237 | FREUDENSTADT | 5.5 | 146 |
| FREI | BURG, REG BEZ. | | |
| 8311 | FREIBURG I.BREISGAU, STADT | 2 | 24 |
| 8315 | BREISGAU-HOCHSCHWARZWALD | 23 | 35 |
| 8316 | EMMENDINGEN | 20 | 37 |
| 8317 | ORTENAUKREIS | 16 | 38 |
| 8325 | ROTIVEIL | 25 | 55 |
| 8326 | SCHWARZWALD-BAAR-KREIS | 32 | 41 |
| 8327 | TUTTLINGEN | 29 | 42 |
| 8335 | KONSTANZ | 42 | 39 |
| 8336 | LOEPRACH | 39 | 65 |
| 8337 | WALDSHUT | 0 · | Ő |
| TUEB | INGEN,REGBEZ. | | |
| 8415 | RENTLINGEN | 35 | 30 |
| 8416 | THERINGEN | 36 | 40 |
| 8417 | 7011 EDNALQKDETC | 4 | 47 |
| 87.24 | ενειεινηλερονείο Η Μ. ΠΝΙΝΕΡΟΓΙΛΕΤΟΓΙΑΝΥ | 0 | |
| 0461 | | 7 7 | 41 |
| 0467 | | 20 | 20 |
| 0420 | N 1 N E K A V A A A A E K A V A K K K A A A A A A A A A A A A A | 29 | 43 |
| 0432 | NUVENSEEKKELS RAVENODUNG | 66 | 20 |
| 6436 | RAVENSHURG | 8 | 58 |
| 8437 | SIGMARINGEN | 32 | 27 |
| BAYER | RN |
|-------|--------------------------|
| | u 600 |
| | |
| OBERF | AYERN, REGBEZ. |
| | |
| 9161 | INGOLSTADT, STADT |
| 9162 | MUENCHEN, STADT |
| 9163 | ROSENHEIM, STADT |
| 9171 | ALTOETTING |
| 9172 | BERCHTESGADENER LAND |
| 9173 | BAD TOELZ-WOLFRATSHAUSEN |
| 9174 | DACHAU |
| 9175 | EBERSBERG |
| 9176 | ETCHSTAETT |
| 9177 | ERDING |
| 9178 | FREISING |
| 9179 | FUERSTENFELDBRUCK |
| 918() | GARMISCH-PARTENKIRCHEN |
| 9181 | LANDSBERG A.LECH |
| 9182 | MIESRACH |
| 9183 | MNEHLDORF A.INN |
| 9184 | MUENCHENLAND |
| 9185 | NEUBURG-SCHROBENHAUSEN |
| 9186 | PFAFFENHOFEN A.D.TLM |
| 9187 | ROSENHEIM, LAND |
| | |

9188 STARNBERG 9189 TRAUNSTEIN 9190 WEILHEIM-SCHONGAU

NIEDERBAYERN, REG.-BEZ.

| 9261 | LANDSHUT, STADT | 9 | 31 |
|------|-------------------|----|-----|
| 9262 | PASSAU, STADT | 18 | 118 |
| 9263 | STRAUBING, STADT | 2 | 53 |
| 9271 | DEGGENDORF | 12 | 58 |
| 2226 | FREYUNG-GRAFENAU | 18 | 117 |
| 9273 | KELHEIM | 13 | 52 |
| 9274 | LANDSHUT, LAND | 1 | 25 |
| 9275 | PASSAU,LAND | 14 | 56 |
| 9276 | REGEN | 13 | 63 |
| 9277 | ROTTAL-INN | 5 | 42 |
| 9278 | STRAUBING-BOGEN | 9 | 39 |
| 9279 | DINGOLFING-LANDAU | 16 | 62 |

OPERPFALZ, REG.-BEZ.

| 9361 | AMBERG, STADT | 14 | 43 |
|------|------------------------|----|----|
| 9362 | REGENSBURG, STADT | 1 | 53 |
| 9363 | WEIDEN I.D. OPF, STADT | 16 | 45 |
| 9371 | AMBERG-SULZBACH | 13 | 31 |
| 9372 | CHAM | 12 | 48 |
| 9373 | NEUMARKT I.D.OPF. | 13 | 62 |
| 9374 | NEUSTADT A.D.WALDNAAB | 12 | 46 |
| 9375 | REGENSBURG, LAND | 18 | 53 |
| 9376 | SCHWANDORF | 22 | 27 |
| 9377 | TIRSCHENREUTH | 1 | 39 |

| OBER | FRANKEN,REGBEZ. | | |
|-------|---|-----|------------|
| 9461 | HAMBERG STADT | 7 | 39 |
| 9462 | BAYREUTH STADT | 20 | 46 |
| 9463 | COBURG - STADT | 12 | 40 |
| 9464 | HOF.STADT | 19 | 57 |
| 9471 | BAMBERG | 13 | 47 |
| 9472 | BAYREUTH | 21 | 71 |
| 9473 | COBURG | 24 | 42 |
| 9474 | EORCHHEIM | 14 | 62 |
| 9475 | HOF | 0 | 50 |
| 9476 | KDONACH | , , | 40 |
| 0/77 | | 44 | 502 |
| 0/79 | | 27 | 56 |
| 01.70 | LIUNCTENEL I ETCHTELOEDIDEE | 40 | 77 |
| 7417 | WORSTEDEL LOFICHIELGERIKGE | 10 | ('+ |
| ודדוו | EI.FRANKEN, REG BEZ. | | |
| 9561 | ANSBACH, STADT | 15 | 37 |
| 9562 | ERLANGEN, STADT | 15 | 49 |
| 9563 | FUERTH, STADT | 6 | 47 |
| 9564 | NUERNRERG, STADT | 9 | 43 |
| 9565 | SCHWARACH, STADT | 17 | 43 |
| 9571 | ANSBACH . LAND | Q | 57 |
| 9572 | FRIANGEN-HOFCHSTADT | Ŕ | 41 |
| 9573 | EHERTH LAND | 7 | 52 |
| 9574 | | 11 | 46 |
| 9575 | NEUSTART & D. ATSCH-BAD WINDSHETM | 16 | 52 |
| 0576 | DOTU NEVERISCH-BAU WINDSHFIM | 10 |)) (7 |
| 9577 | WEISSENRIDG=GUN7ENUAUSEN | 18 | 43 |
| /) | SERBORIC CONZERNAUSEN | 10 | |
| UNTER | RFRANKEN, REGBEZ. | | |
| 0441 | | 47 | 4.1 |
| 7001 | ASCHAFFENNURG, STADT | 10 | 74 |
| 7006 | SCHWEINFURT, STADI | (| |
| Y003 | WHERZBURG, STADI | 11 | 54 |
| 9071 | ASCHAFFENHURG, LAND | 10 | 54 |
| 9672 | HAD KISSINGEN | 12 | 85 |
| 9673 | RHOEN-GRABFELD | 13 | 59 |
| 9674 | HASSBERGE | 5 | 81 |
| 9675 | KITZINGEN | 10 | Σò |
| 9676 | MILTENBERG | 9 | 29 |
| 9677 | NAIN-SPESSART | 11 | 44 |
| 9678 | SCHNEINFURT | 10 | 54 |
| 9679 | WUERZBURG | 7 | 44 |
| SCHW | NBEN,REGBEZ. | | |
| 9761 | AUGSBURG STADT | 12 | 7.0 |
| 9762 | KAUERENDEN STANT | 10 | 47 75 |
| 0767 | NAUFDEUREN STADT | 10 | 4) |
| 7100 | NERVER CALINARUZZSTADI MEMMINCEN STANI | 11 | (E 4 |
| 7704 | PEPPITRUEN/01401 ATCHACU_EDTENDEN/ | 15 | 2 I E 1 |
| 7771 | A LUDAU DE LAND A HOODHDO LAND | 14 | 26 |
| 7116 | | 1.5 | 40 |
| 7775 | UILLINGEN A,UOUNAU | 8 | 45 |
| 7774 | GUENZBURG | 15 | 25 |
| 9775 | | 16 | 46 |
| 9776 | LINDAU (HODENSEE) | 15 | 43 |
| 9777 | OSTALLGAEU | 13 | 42 |
| 9778 | UNTERALLGAFU | 14 | 40 |
| 9779 | DONAU-RIES | 21 | 46 |
| 9780 | OBERALLGAEU | 1 | 54 |

SAARLAND

| 10041 STADTVERBAND SAARBRUECKEN | 27 | 35 |
|---------------------------------|-----|----|
| 10042 LANDKRETS MERZIG-WADERN | 12 | 54 |
| 10043 LANDKREIS NEUNKIRCHEN | 23 | 42 |
| 10044 LANDKREIS SAARLOUIS | 19 | 43 |
| 10045 SAAR-PFALZ-KREIS | 27 | 42 |
| 10046 LANDKREIS ST.WENDEL | 8 | 57 |
| RERLIN (WEST) | 268 | 31 |

ANHANG A6: ERGEBNISSE VON FREILUFTMESSUNGEN

Spalte 1: Gemeindekennziffer (Stand November 1981)

Spalte 2: Gemeindenamen

Spalte 3: Radonwert in Bq/m^3

BREMEN

| 04011000 | Bremen (Stadt) | 11 |
|----------|----------------|----|
| 04012000 | Bremerhaven | 11 |

NORDRHEIN-WESTFALEN

| 05111000 | Düsseldorf | 19 |
|------------|-----------------|----|
| 05113000 | Essen | 17 |
| 05162012 | Jüchen | 30 |
| 05313000 | Aachen | 15 |
| 05315000 | Köln | 16 |
| 05382060 | Siegburg | 16 |
| 05515000 | Münster | 15 |
| 05766000 | Bad Salzuflen | 15 |
| 05774008 | Bad Lippspringe | 17 |
| 0 59580 48 | Winterberg | 14 |
| 05974004 | Anröchte | 17 |
| 05974044 | Warstein | 16 |

HESSEN

| 0641400 | Wiesbaden | 13 |
|----------|---------------------|----|
| 06431002 | Bensheim | 16 |
| 06431015 | Lindenfels | 15 |
| 06432008 | Griesheim | 13 |
| 06433004 | Gernsheim | 13 |
| 06434005 | Königstein (Taunus) | 14 |
| 06434009 | Schmitten | 7 |
| 06435012 | Gründau | 19 |
| 06435021 | Nidderau | 21 |
| 06435025 | Schlüchtern | 14 |
| 06437002 | Beerfelden | 15 |
| 06437005 | Brambachtal | 13 |
| 06439004 | Geisenheim | 21 |
| 06439005 | Heidental | 20 |
| 06439010 | Lorch | 28 |
| 06439016 | Waldems | 16 |

SCHLESWIG-HOLSTEIN

| 01001000 | Flensburg | 5 |
|--------------|----------------------|----|
| 01002000 | Kiel | 11 |
| 01003000 | Lübeck | 7 |
| 01051004 | Heide | 7 |
| 01051046 | Helse | 6 |
| 01053032 | Geesthacht | 9 |
| 0 10 5 30 90 | Mölln | 9 |
| 01054103 | Pellworm | 8 |
| 01054113 | St.Peter-Ording | 6 |
| 01055012 | Eutin | 7 |
| 01055027 | Lensahn | 9 |
| 01056010 | Brande-Hörnerkirchen | 7 |
| 01056041 | Quickborn | 6 |
| 01057030 | Hohwacht (Ostsee) | 6 |
| 01058135 | Rendsburg | 6 |
| 01059024 | Erfde | 7 |
| 01059075 | Schleswig | 10 |
| 01059160 | Stoltebüll | 9 |
| 01060092 | Wahlstedt | 6 |
| 01061029 | Glückstadt | 13 |
| 01062001 | Ahrensburg | 7 |

NIEDERSACHSEN

| 03101000 | Braunschweig | 15 |
|----------|--------------|----|
| 03152012 | Göttingen | 16 |
| 03153003 | Braunlage | 16 |
| 03201000 | Hannover | 13 |
| 03354010 | Lüchow | 16 |
| 03402000 | Emden | 10 |
| 03452020 | Norderney | 9 |
| 03454032 | Lingen | 5 |

| 06440002 | Bad Nauheim | 17 |
|----------|--------------------|----|
| 06440005 | Butzbach | 13 |
| 06532006 | Dillenburg | 15 |
| 06533009 | Limburg | 23 |
| 06533017 | Weilburg | 11 |
| 06534004 | Biedenkopf | 14 |
| 06535001 | Alsfeld | 23 |
| 06535007 | Grebenhain | 16 |
| 06535009 | Homberg (Ohm) | 17 |
| 06535016 | Schotten | 17 |
| 06535019 | Wartenberg | 22 |
| 06611000 | Kassel | 19 |
| 06631009 | Fulda | 21 |
| 06631010 | Gersfeld | 15 |
| 06632002 | Bad Hersfeld | 15 |
| 06633027 | Wahlsberg | 16 |
| 06634006 | Gilserberg | 17 |
| 06634014 | Melsungen | 19 |
| 06634017 | Neukirchen | 17 |
| 06635002 | Arolsen | 17 |
| 06635003 | Bad Wildungen | 16 |
| 06635011 | Frankenberg (Eder) | 16 |
| 06635021 | Waldeck | 15 |
| 06635022 | Willingen | 14 |
| 06636003 | Eschwege | 17 |
| 06636005 | Herleshausen | 16 |
| 06636011 | Sontra | 21 |
| 06636016 | Witzenhausen | 23 |

RHEINLAND-PFALZ

| 07111000 | Koblenz | 17 |
|----------|-----------------------|----|
| 07131058 | Nürburg | 13 |
| 07143206 | Bad Marienberg | 13 |
| 07211000 | Trier | 20 |
| 07231018 | Deuselbach | 19 |
| 07316000 | Neustadt (Weinstraße) | 9 |

BADEN-WÜRTTEMBERG

| 08111000 | Stuttgart | | |
|----------|-------------------------|----|--|
| 08115021 | Herrenberg | | |
| 08115052 | Weißach | | |
| 08116049 | Nürtingen | | |
| 08116078 | Leinfelden-Echterdingen | | |
| 08118048 | Ludwigsburg | 9 | |
| 08119044 | Murrhardt | 16 | |
| 08121000 | Heilbronn | | |
| 08125026 | Eppingen | | |
| 08125068 | Neudenau | 21 | |
| 08125102 | Weinsberg | 29 | |
| 08126039 | Ingelfingen | 23 | |
| 08126066 | Öhringen | 22 | |
| 08127014 | Crailsheim | 16 | |
| 08127052 | Mainhardt (Hütten) | 17 | |
| 08128007 | Bad Mergentheim | 23 | |
| 08128014 | Boxberg | 32 | |
| 08128115 | Tauberbischofsheim | 21 | |
| 08128131 | Wertheim | 21 | |
| 08128139 | Lauda-Königshofen | | |
| | (Gerlachsheim) | 28 | |
| 08135019 | Heidenheim (Brenz) | 13 | |
| 08136019 | Ellwangen (Jaqst) | 10 | |
| 08136027 | Gschwend | 14 | |
| 08136065 | Schwäbisch-Gmünd | 17 | |
| 08211000 | Baden-Baden | 18 | |
| 08212000 | Karlsruhe | 17 | |
| 08215066 | Philippsburg | 23 | |
| 08216008 | Bühlertal | 23 | |
| 08221000 | Heidelberg | 19 | |
| 08222000 | Mannheim | 23 | |
| 08225014 | Buchen (Odenwald) | 23 | |
| 08226013 | Eberbach | 21 | |
| 08231000 | Pforzheim | 24 | |
| 08235010 | Dobel | 19 | |
| 08235033 | Bad Herrenalb | 19 | |

Höfen an der Enz Nagold Wildbad (Schwarzwald) Knittlingen Freudenstadt Schopfloch Freiburg im Breisgau Bad Krozingen Badenweiler Ebringen Feldberg (Schwarzwald) Friedenweiler Hartheim (Bremgarten) Hinterzarten Lenzkirch St. Märgen Schluchsee Titisee-Neustadt Münstertal Vogtsberg (Kaiserstuhl) 24 Emmendingen Forchheim Freiamt (Ottoschwanden) 28 Gengenbach Lahr (Schwarzwald) Offenburg Sasbachwalden Wolfach Rheinau Oberndorf am Neckar Wellendingen Bad Dürrheim Donaueschingen Königsfeld (Schwarzw.) Schönwald (Schwarzwald) 23 Schonach (Schwarzwald) Triberg (Schwarzwald) Villingen-Schwenningen

| 08327030 | Neuhausen ob Eck | 23 | | | |
|----------|-------------------------|----|--|--|--|
| 08327046 | Spaichingen(Klippeneck) | | | | |
| 08327050 | Tuttlingen | | | | |
| 08335001 | Aach | | | | |
| 08335043 | Konstanz | | | | |
| 08335063 | Radolfzell (Bodensee) | 21 | | | |
| 08335079 | Stockach | | | | |
| 08336019 | Eimeldingen | | | | |
| 08336069 | Rheinfelden (Baden) | | | | |
| 08336081 | Schopfheim | | | | |
| 08336104 | Malsburg-Marzell | 18 | | | |
| 08337022 | Bonndorf (Schwarzwald) | 26 | | | |
| 08337051 | Höchenschwand | 20 | | | |
| 08337096 | Bad Säckingen | 24 | | | |
| 08337097 | St. Blasien | 29 | | | |
| 08337097 | Menzenschwand | 44 | | | |
| 08337123 | Wutöschingen | 35 | | | |
| 08337126 | Waldshut-Tiengen | 23 | | | |
| 08415019 | Eningen unter Achalm | 8 | | | |
| 08415053 | Münsingen | 12 | | | |
| 08415078 | Urach | 20 | | | |
| 08416036 | Rottenburg (Neckar) | 27 | | | |
| 08417031 | Hechingen | 29 | | | |
| 08417057 | Schömberg | 22 | | | |
| 08417079 | Albstadt | 24 | | | |
| 08421000 | Ulm | 26 | | | |
| 08425071 | Laichingen | 11 | | | |
| 08426021 | Biberach an der Riß | 21 | | | |
| 08435013 | Eriskirch | 28 | | | |
| 08435059 | Überlingen | 25 | | | |
| 08436008 | Aulendorf | 23 | | | |
| 08436049 | Isny (Allgäu) | 19 | | | |
| 08436064 | Ravensburg | 24 | | | |
| 08437076 | Mengenburg | 21 | | | |
| 08437088 | Pfullendorf | 21 | | | |
| 08437104 | Sigmaringen | 21 | | | |
| | | | | | |

BAYERN

| 09162000 | München | | | | |
|----------|-------------------------|----|--|--|--|
| 09180117 | Garmisch-Partenkirchen | | | | |
| 09183128 | Mühldorf (Inn) | | | | |
| 09187120 | Brannenburg-Wendelstein | | | | |
| 09190130 | Hohenpeißenberg | | | | |
| 09262000 | Passau | | | | |
| 09761300 | Lindberg-Gr.Falkenstein | 18 | | | |
| 09362000 | Regensburg | | | | |
| 09363000 | Weiden (Oberpfalz) | 32 | | | |
| 09461000 | Bamberg | 28 | | | |
| 09463000 | Coburg | 17 | | | |
| 09464000 | Hof | 22 | | | |
| 09564000 | Nürnberg | 16 | | | |
| 09577177 | Weißenburg (Bayern) | 17 | | | |
| 09663000 | Würzburg | 22 | | | |
| 09672114 | Bad Kissingen | 17 | | | |

SAARLAND

| 10041100 | Saarbrücken | 15 |
|----------|-------------|----|
| 10046118 | Tholey | 14 |

BERLIN (WEST)

| 11000000 | Berlin | (Stadt) | 17 |
|----------|--------|-------------|----|
| 11000000 | Berlin | (Tempelhof) | 14 |