

APPLICATION NOTE AN-004_DE

Thoron Messungen mit dem RTM1688-2

Version Juli 2007

Zur kontinuierlichen und simultanen Messung von Radon und Thoron eignet sich ausschließlich das Verfahren der Alphaspektroskopie wie es im RTM1688-2 implementiert ist. Die Anreicherung der kurzlebigen Folgeprodukte auf einem Halbleiterdetektor ermöglicht deren Trennung anhand ihrer Emissionsenergie. Allerdings gibt es auch hier Besonderheiten, die das Verhalten des Messgerätes beeinflussen. Ihre Kenntnis ist für die richtige Durchführung einer kombinierten Radon/Thoron-Messung unbedingt erforderlich.

Physikalischer Hintergrund

Bei dem genannten Messverfahren werden die nach dem Zerfall von Radon und Thoron gebildeten und ionisierten Folgeprodukte Po-218 und Po-216 elektrostatisch auf einem Halbleiterdetektor abgeschieden. Die Aktivität der gesammelten Folgeprodukte ist proportional der Radon- bzw. Thoron-Konzentration in der Messkammer (Siehe auch AN-003). Bei der späteren Messung werden umgekehrt die Aktivitätskonzentrationen der Gase anhand der Folgeproduktaktivitäten berechnet. Um eine Trennung der einzelnen Nuklide der beiden Zerfallsreihen zu ermöglichen, wird das Verfahren der Alphaspektroskopie angewendet. Dabei können die folgenden Nuklide im Alpha-Spektrum auftreten:

Aus der Radon (Rn-222) Zerfallsreihe:

Po-218 mit einer Emissionsenergie von 6,002 MeV

Po-214 mit einer Emissionsenergie von 7,687 MeV

Aus der Thoron (Rn-220) Zerfallsreihe:

Po-216 mit einer Emissionsenergie von 6,778 MeV

Po-212 mit einer Emissionsenergie von 8,785 MeV

Bi-212 mit einer Emissionsenergie von 6,050 bzw. 6,080 MeV

Die beiden Gase Radon (5,490 MeV) und Thoron (6,288 MeV) werden im Spektrum nicht sichtbar, da sie nicht auf der Detektoroberfläche gesammelt werden.

Im idealen Spektrum würden die Impulse eines Nuklids als monoenergetische Linie erscheinen, d.h. alle Zerfälle würden in einem Kanal des Spektrums gezählt werden.

Ein reales Alpha-Spektrum zeigt jedoch anstelle einer einzigen Linie eine über mehrere Kanäle verteilte Spitze (Peak). Der Peak besitzt die Form einer Gauß-Kurve mit einer überlagerten flachen Flanke an seiner linken Seite. Diese Flanke nennt man auch Tailing.

Die Gauß-Form erhält der Peak durch das elektronische (thermische) Rauschen des Detektors und der Vorverstärkerelektronik. Dieses Rauschen ist eine physikalische Eigenschaft von Halbleitern und kann deshalb nicht vollständig unterdrückt werden. Das Tailing entsteht durch Energieverluste der Alpha-Teilchen in der nichtsensitiven Passivierungsschicht des Detektors. Seine Ausprägung hängt von der Dicke der Passivierungsschicht und der Geometrie des Detektors ab. Da die Folgeprodukte direkt auf der Oberfläche des Detektors abgelagert werden, ergeben sich zum Teil sehr flache Eintrittswinkel für die in alle Richtungen emittierten Alpha-Teilchen. Die unterschiedlichen Weglängen von Teilchen mit verschiedenen Einfallswinkeln führen zu unterschiedlichen „Restenergien“ beim Eintritt in den sensitiven Bereich des Detektors nach dem Durchdringen der Passivierungsschicht.

Um die registrierten Zerfälle einem Nuklid zuzuordnen, wird für jedes Nuklid je ein eigener Energiebereich (ROI = Region of Interest) gebildet. Die Obergrenze des ROI wird geringfügig oberhalb der Emissionsenergie des Nuklids festgelegt. Die Untergrenze liegt etwas oberhalb der Emissionsenergie des energetisch darunter liegenden Nuklids. Diese Festlegung sichert, dass der Hauptteil der Zerfälle des betreffenden Nuklids in diesem ROI gezählt wird und eine Beeinflussung ausschließlich durch die Tailings der Nuklide mit höheren Emissionsenergien erfolgt.

Für die ROI's der einzelnen Folgeprodukte ergibt sich die folgende Situation:

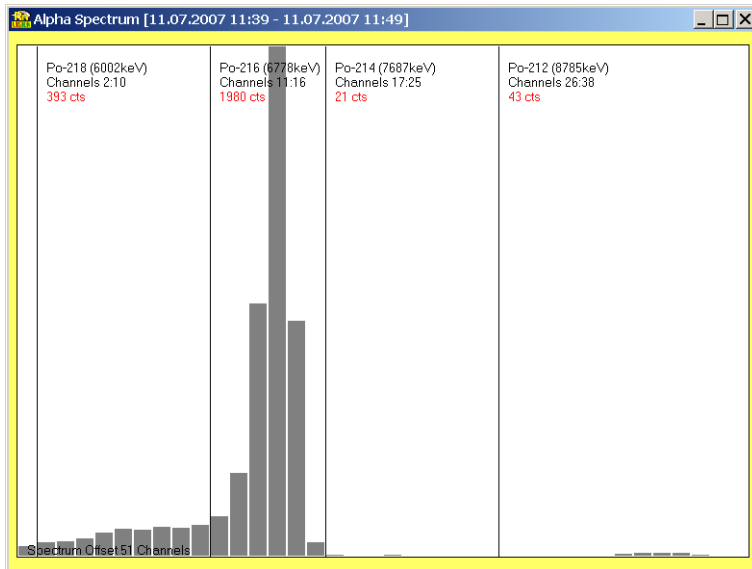
ROI Po-212: Dieses ROI ist ungestört, da kein Nuklid mit einer höheren Emissionsenergie vorhanden ist. Po-212 wird für die Konzentrationsbestimmung von Radon und Thoron nicht verwendet und tritt nur als Störgröße in Erscheinung.

ROI Po-214: Etwa 5% der Zerfälle des Po-212 werden im ROI des Po-214 gezählt. Eine hohe Po-212 Aktivität führt zu einem Untergrund bei der Messung von Radon im Slow-Mode.

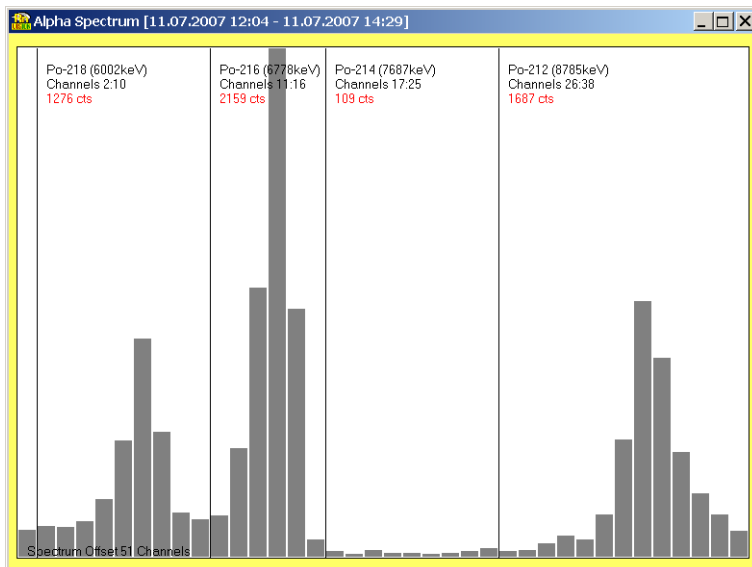
ROI Po-216: In diesem ROI werden neben dem Po-216 ca. 8% der Zerfälle des Po-214 und 2% der Zerfälle des Po-212 gezählt. Eine hohe Po-212 Aktivität als auch eine hohe Po-214 Aktivitäten führen zu einem Untergrund bei der Thoron-Messung.

Po-218: Neben Po-218 werden ungefähr 20% der Po-216 Zerfälle in diesem ROI gezählt. Außerdem werden alle Zerfälle des Bi-212 registriert, da Bi-212 und Po-218 eine nahezu identische Emissionsenergie besitzen (6,002 MeV und 6,050/6,089 MeV) und damit spektroskopisch nicht zu trennen sind. Hohe Aktivitäten von Po-216 und Bi-212 führen zu einem Untergrund bei der Radonmessung.

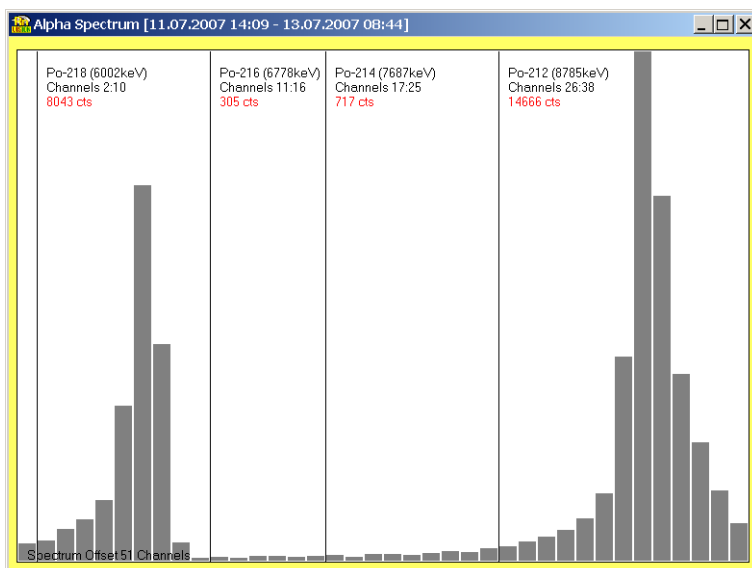
Die nachfolgenden Abbildungen zeigen verschiedene Alpha-Spektren, welche den Sachverhalt verdeutlichen.



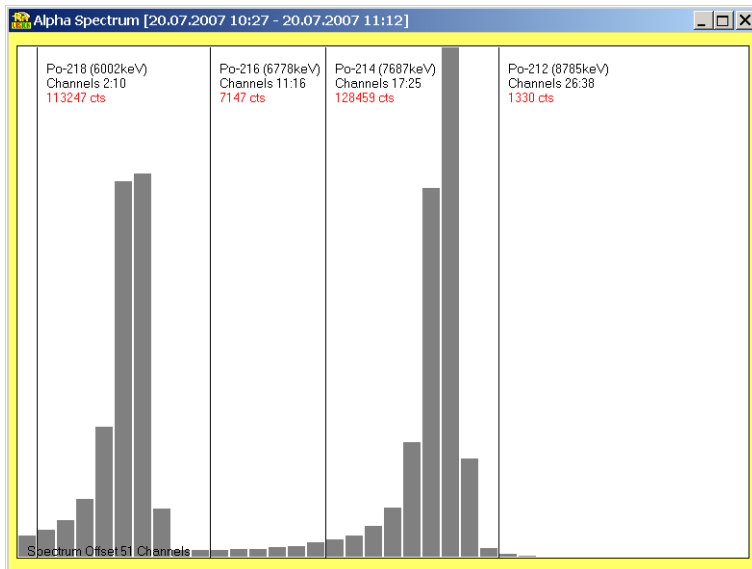
Thoron-Spektrum in den ersten Stunden der Exposition. Es ist nur Po-216 vorhanden, da Po-212 und Bi-212 durch das dazwischenliegende Pb-212 stark verzögert entstehen und zerfallen. Das Tailing des Po-216 im ROI für Po-218 ist gut sichtbar.



Reines Thoron-Spektrum im Aktivitätsgleichgewicht. Die Po-212 und Bi-214 Peaks sind vollständig ausgebildet. Sehr gut zu sehen ist, dass der Bi-214 Peak genau in das Po-218 ROI fällt. Die auffallende Flanke am rechten Rand des Po-212 Peaks rührt von dem vorangegangenen Beta-Zerfall des Bi-212 her. Durch die kurze Halbwertszeit des Po-212 von ca. 0,3 μ s überlagern sich die Impulse von Alpha und Beta-Zerfall.



Spektrum nach erfolgter Thoron-Exposition. Der Po-216 Peak ist sofort nach der Exposition verschwunden. Die beiden Peaks für Po-212 und Bi-214 sind noch für mehrere Tage im Spektrum zu sehen (Halbwertszeit des Pb-212 ist 10,64 Stunden). Das Tailing des Po-212 in den ROI's für Po-214 und Po-216 ist zu erkennen.



Radon-Spektrum im Aktivitäts-Gleichgewicht. Das Tailing des Po-214 fällt in das ROI für Po-216. Der Po-218 Peak ist im Vergleich zum Bi-212 Peak in den oberen Spektren durch die 50 bzw. 80 keV geringere Emissionsenergie leicht nach links verschoben.

Damit wird klar, dass sich Radon- und Thoron bei ihrer Messung gegenseitig beeinflussen und eine entsprechende Korrektur erfolgen muss.

Korrekturverfahren

Die Tailings können als detektorspezifische Gerätekonstanten betrachtet werden. Während der Kalibrierung eines jeden Gerätes wird der prozentuale Anteil von Zerfällen der störenden Nuklide innerhalb der jeweils gestörten ROI's ermittelt.

So beschreibt z.B. die Tailing-Konstante „Tailing (Po-212 > Po-214)“ die durch das Po-212 verursachte Untergrundaktivität im ROI des Po-214. Nach Exposition des Gerätes in einer reinen Thoron Atmosphäre kann diese Konstante mit beliebiger statistischer Genauigkeit bestimmt werden, da in diesem Falle nur die Störgröße Po-212, nicht aber das Po-214 selbst im ROI des Po-214 erscheint. Im gewählten Beispiel sollen das ROI3 dem Po-214 und das ROI4 dem Po-212 zugeordnet sein:

$$K_{212>214} = 100\% * N(\text{ROI3}) / \{N(\text{ROI3}) + N(\text{ROI4})\}$$

$N(\text{ROI3})$ und $N(\text{ROI4})$ sind die in den beiden ROI registrierten Zerfälle des Po-212, $K_{212>214}$ ist die Tailingkonstante „Tailing (Po-212 > Po-214)“.

Beim späteren Einsatz des Gerätes in einer gemischten Atmosphäre enthält das ROI3 sowohl die Zerfälle des Po-214 als auch einen Teil der Po-212 Zerfälle. Um das Po-214 zu trennen, müssen die Po-212 Impulse subtrahiert werden. Dazu werden die im ROI4 ungestört registrierten Zerfälle des Po-212 herangezogen:

$$N(\text{Po-214}) = N(\text{ROI3}) - \{K_{212>214} / (1 - K_{212>214}) * N(\text{ROI4})\}$$

$N(\text{Po-214})$ steht für die sind die dem Po-216 zuordenbaren Zerfälle im ROI3.

Dieses Verfahren wird prinzipiell für jedes Nuklid angewendet.

Für das Bi-212 im ROI des Po-218 muss ein anderer physikalischer Zusammenhang herangezogen werden. Hier ist es nicht möglich je ein separates ROI für beide Nuklide zu bilden. Jedoch steht das Bi-212 stets im festen Verhältnis zum Po-212. Dies resultiert aus zwei verschiedenen Zerfallszweigen des Bi-212. Während statistisch betrachtet ca. 36% des

Bi-212 direkt durch einen Alpha Zerfall umgewandelt werden, entsteht aus den restlichen ca. 64% über einen Beta-Zerfall zunächst Po-212. Dieses zerfällt mit einer Halbwertszeit von nur 0,298 μ s praktisch sofort als Alpha-Strahler. Das Aktivitätsgleichgewicht ist damit zu jedem Zeitpunkt der Messung gegeben. Für die Bi-214 Zerfälle innerhalb des Po-218 ROI ergibt sich demzufolge:

$$N(\text{Bi-214}) = 0,5625 * N(\text{ROI4})$$

$N(\text{ROI4})$ sind die im ROI4 ungestört gezählten Po-212 Zerfälle.

Statistische Betrachtungen zum Korrekturverfahren - Erkennungsgrenze

Da die Aktivität eines Nuklids selbst statistischen Schwankungen unterliegt (siehe AN-003), gilt dies natürlich genauso für den Untergrund, den dieses Nuklid in den energetisch darunter liegenden ROI's erzeugt. Deshalb gelten die oben angeführten Formeln lediglich für die Erwartungswerte bei einer gegen unendlich gehenden Anzahl von detektierten Zerfällen.

In der Praxis liegt stets eine endliche Anzahl von Zerfällen vor, so dass die Schwankungsbreite des jeweiligen Untergrundes im statistischen Sinne geschätzt werden muss. Um dies zu verdeutlichen soll erneut das Beispiel von Po-212 und Po-214 bemüht werden. Unter der Annahme, dass kein Po-214 auf dem Detektor vorhanden ist würde von Messintervall zu Messintervall eine unterschiedliche Anzahl von Po-212 Zerfällen im ROI des Po-214 gezählt werden. Wird jetzt das oben beschriebene Korrekturverfahren angewandt, würde statistisch betrachtet in 50% aller Fälle eine positive Anzahl von Po-214 und in den anderen 50% eine negative Anzahl von Po-214 Zerfällen berechnet werden. Im ersten Fall würde demnach eine Po-214 Aktivität gemessen werden, die nicht vorhanden ist. Um dies zu vermeiden, wird die Schwankungsbreite des Untergrundes aus der Po-212 Aktivität berechnet. Eine Po-214 Aktivität wird erst dann als vorhanden angenommen wenn die im ROI des Po-214 gezählte Anzahl von Zerfällen größer als die erwartete (geschätzte) Schwankungsbreite des Untergrundes ist. Alle anderen positiven Ergebnisse können zwar Po-214 Zerfälle enthalten – müssen es aber nicht.

Die Schätzung der Schwankungsbreite erfolgt unter der Annahme bzw. Vorgabe eines Vertrauensbereiches. Dieser legt fest mit welcher Wahrscheinlichkeit der Untergrund tatsächlich innerhalb der berechneten Schwankungsbreite liegt. Ein Vertrauensintervall von 95% bedeutet, dass bei 5% aller Messintervalle ein größerer Untergrund als der berechnete auftritt. Das heißt aber auch: in 5% aller Fälle wird trotz Korrektur ein Po-214 Beitrag berechnet obwohl er nicht vorhanden ist. Natürlich könnte man den Vertrauensbereich größer wählen. Allerdings sinkt dann gleichzeitig die Wahrscheinlichkeit einen tatsächlichen Beitrag des Po-214 zu erkennen.

Den Wert ab dem ein Beitrag des Nutzsignals (im Beispiel Po-214) angenommen wird, bezeichnet man als Erkennungsgrenze.

Bedeutung der Erkennungsgrenzen bei der Messung

Zum besseren Verständnis der messtechnischen Bedeutung der Erkennungsgrenze sollen drei verschiedene Situationen betrachtet werden:

Fall 1: Es liegt eine reine Radon Atmosphäre vor, Po-212/Bi-212 sind nicht vorhanden

Die ROI's für Po-218 und Po-214 werden nicht gestört. Jeder detektierte Impuls innerhalb der ROI's kann eindeutig zugeordnet werden. Die Erkennungsgrenze entspricht im Fast-Mode genau einem Impuls im ROI für Po-218 bzw. im Slow-Mode einem Impuls in einem der beiden ROI's.

Das ROI für Po-216 wird durch das Tailing des Po-214 gestört. Dieses befindet sich bereits nach 3 Stunden im Aktivitätsgleichgewicht mit Po-218. Die Erkennungsgrenze für die Zerfälle des Po-216 steigt mit steigender Schwankungsbreite der Po-214 Aktivität.

Das mit 95% festgelegte Vertrauensintervall zur Schätzung des Po-214-Untergrundes führt in 5% aller Fälle zur Berechnung eines nicht vorhandenen Po-216-Beitrages.

Die Erkennungsgrenze für das Thoron steigt demnach mit steigender Radonkonzentration. Es werden mit einer Wahrscheinlichkeit von 5% Thoron-Konzentration angezeigt obwohl Thoron nicht vorhanden ist.

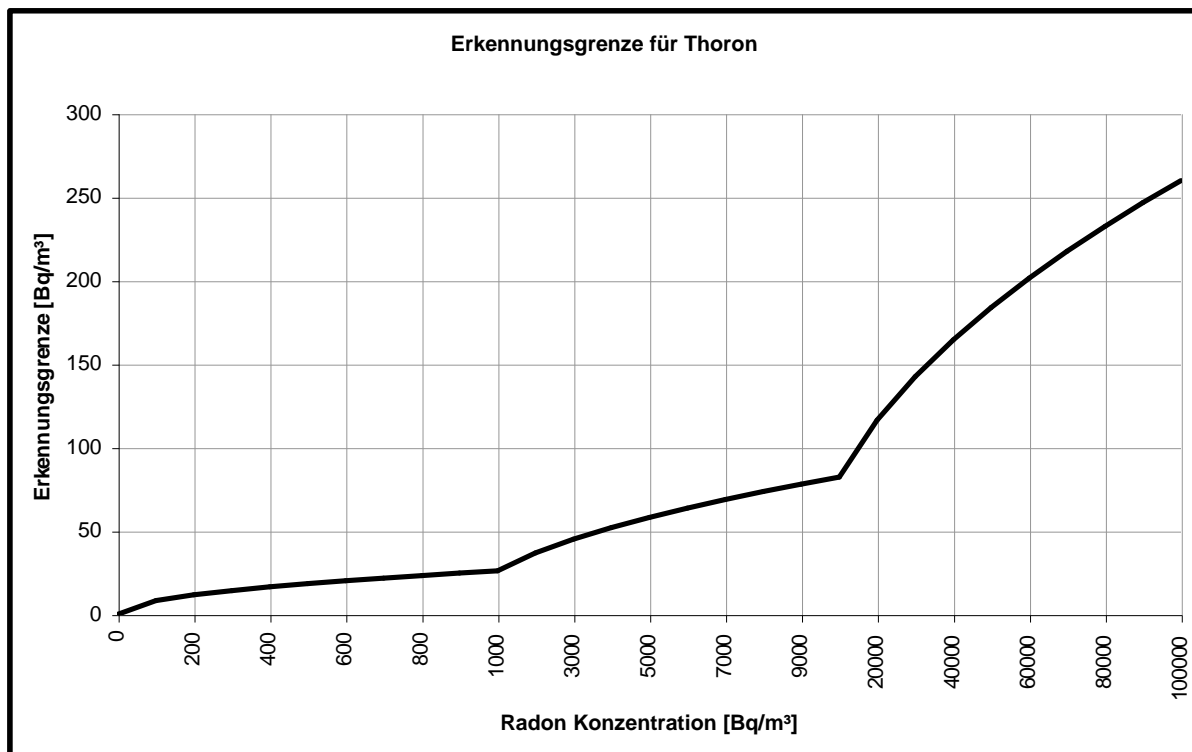


Abb. 1 Erkennungsgrenze (2σ) für Thoron (RTM1688-2, 60 Minuten Messintervall)

Fall 2: Es liegt eine reine Thoron Atmosphäre vor

Zu Beginn der Messung erscheint lediglich Po-216 im Alpha-Spektrum. Po-212 und Bi-212 sind aufgrund des in der Zerfallskette dazwischenliegenden Pb-212 mit einer Halbwertszeit von mehr als 10 Stunden noch nicht vorhanden. Durch das Tailing des Po-216 wird das ROI für Po-218 gestört. Entsprechend Fall 1 steigt die Erkennungsgrenze für Po-218 mit steigender Anzahl Po-216 Zerfälle. Nach entsprechend langer Zeit generiert das sich langsam aufbauende Po-212 einen Untergrund in den ROI's für Po-214 und Po-216. Mit steigendem Untergrund erhöhen sich die Erkennungsgrenzen sowohl für Po-214 als auch für Po-216.

Ein noch größeres Problem stellt das Bi-212 dar. Während nur wenige Prozent der Zerfälle des Po-212 als Tailing wirksam werden, fallen alle Bi-212-Impulse in das ROI für Po-218. Die Erkennungsgrenze für Po-218 steigt demnach deutlich schneller als die der Nuklide Po-214 und Po-216.

Für die Thoron Konzentration bedeutet der Po-212-Untergrund nur eine geringfügige Erhöhung der Erkennungsgrenze

Die Erkennungsgrenze für Radon im Fast-Mode (nur auf Po-218 basierend) steigt stark an. Gleiches gilt für die Erkennungsgrenze im Slow-Mode, wo Po-218 etwa zur Hälfte in die Berechnung eingeht. In diesem Fall liefert die ausschließliche Verwendung des Po-214 zur Bestimmung der Radonkonzentration eine deutlich geringere Erkennungsgrenze. Der Monitor RTM1688-2 schaltet in diesem Fall automatisch auf den geänderten Berechnungsmodus um.

Aufgrund des gewählten Vertrauensintervalls für die Schwankungsbreiten des Po-212 bzw. Bi-212 Untergrundes werden auch hier in 5% aller Fälle Radonkonzentrationen berechnet obwohl kein Radon vorliegt.

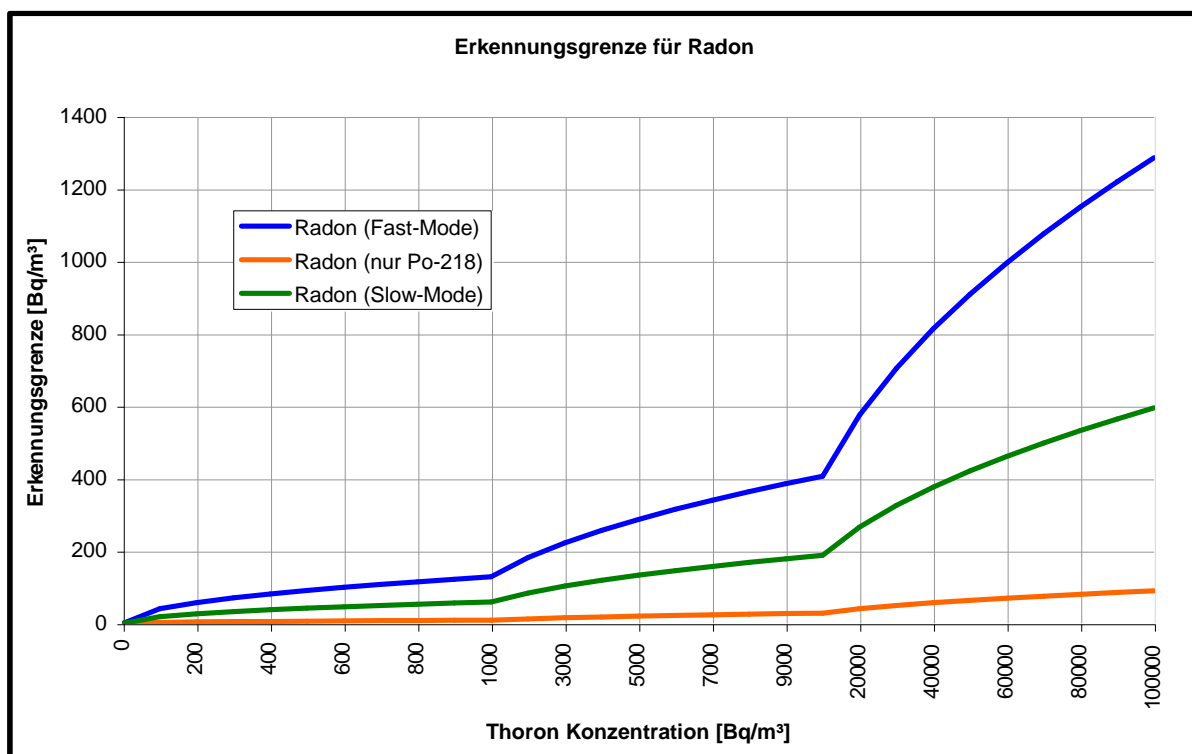


Abb. 2 Erkennungsgrenzen (2σ) für Radon (RTM1688-2, 60 Minuten Messintervall)

Fall 3: Gemischte Atmosphäre

Bei der simultanen Messung von Radon und Thoron ist also Voraussetzung, dass die Konzentrationen beider Komponenten oberhalb der Erkennungsgrenzen liegen. Die statistischen Fehler, die für die Messung einer gemischten Atmosphäre zu erwarten sind hängen zum einen von dem Verhältnis der Konzentrationen und zum anderen von der absoluten Anzahl der detektierten Zerfälle innerhalb der ROI's ab. Letztere sind von der Höhe der Konzentrationen selbst, dem gewählten Messintervall und der Sensitivität des Monitors abhängig. Die Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis zwischen Radon und Thoron soll qualitativ anhand des Diagramms in Abb. 3 erläutert werden.

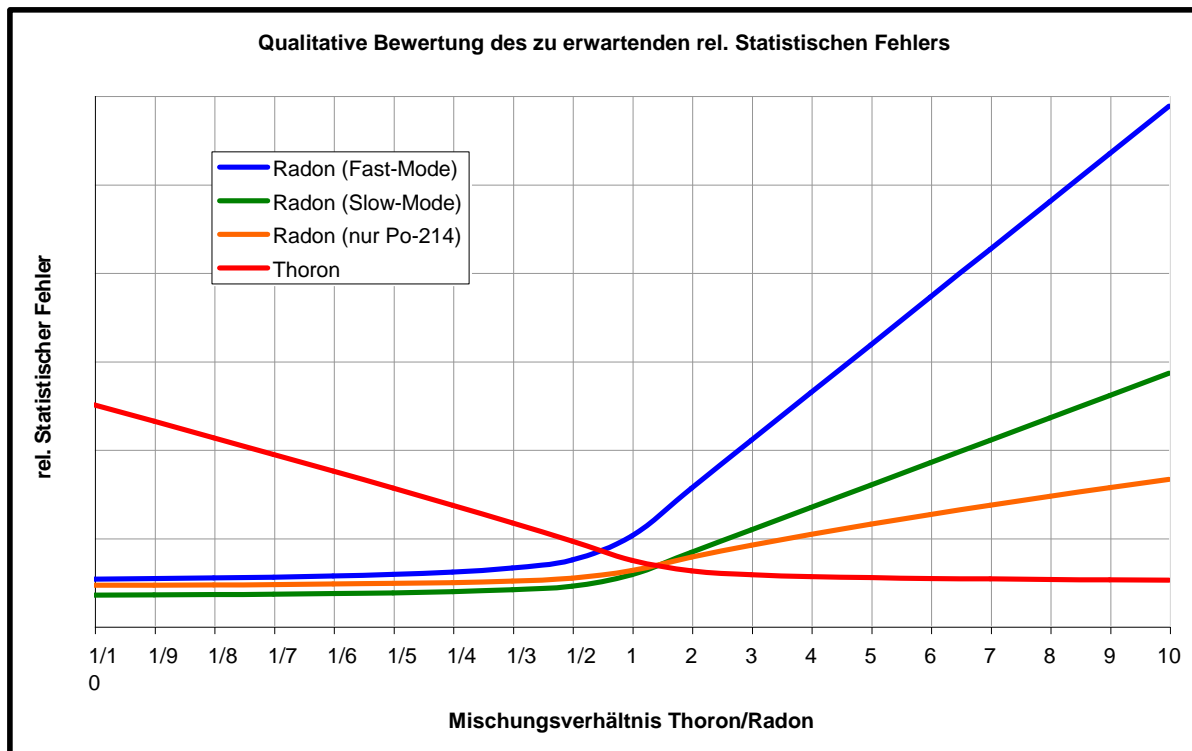


Abb. 3 Statistische Fehler bei Mischatmosphären, qualitativ

Auf der X-Achse ist das Mischungsverhältnis von Thoron zu Radon aufgetragen, ein Wert von 4 heißt, dass die Thoronkonzentration viermal höher als die Radonkonzentration ist, ein Wert von $1/4$ hingegen, dass die Radonkonzentration viermal höher als die des Thoron ist. Bei einem Mischungsverhältnis zwischen 0,5 und 2 liegen die Fehler beider Komponenten relativ niedrig. Nach links steigt der Thoron-Fehler (rote Kurve) durch den immer deutlicher werdenden Untergrund des Po-214 stark an.

Für den Radonfehler ergibt sich ein umgekehrtes und nach den verwendeten Berechnungsmethoden differenziertes Bild. Bei der Berechnung im Fast-Mode (nur auf Po-218 Basis, blaue Kurve) führen das Po-216 Tailing und vor allem der durch das Bi-212 verursachte Untergrund zu einem starken Anstieg des Fehlers bei Mischungsverhältnissen mit vielfacher Thoron-Konzentration.

Da im Slow-Mode (grüne Kurve) zusätzlich das nur geringfügig durch das Tailing des Po-212 gestörte Po-214 in die Berechnung einbezogen wird, fällt der Anstieg weniger deutlich aus. Am geringsten ist der Anstieg des Fehlers, wenn ausschließlich das Po-214 zur Radonberechnung verwendet wird. Der Einfluss des Thoron beschränkt sich hier auf das Tailing des Po-212. Der Anstieg ist im Vergleich zum Thoron bei umgekehrtem Mischungsverhältnis geringer. Dies ist begründet durch die kleinere Tailing-Konstante (5% gegenüber 20%) und dem Umstand, dass im Gleichgewichtszustand nur 64% des Po-216 später als Po-212 wirksam werden (36% zerfallen als Bi-212).

Praktische Umgang mit dem Radon Monitor bei der Messung von Mischatmosphären

Bei der kontinuierlichen Messung stellt die gegenseitige Beeinflussung von Radon und Thoron meist kein Problem dar. Übersteigen die Mischungsverhältnisse den Faktor 100 kann die in geringem Maße vorkommende Komponente aus der Sicht des Strahlenschutzes vernachlässigt werden. Einzige Einschränkung ist die u.U. erforderliche Wahl des Slow-Modes für die Radonberechnung mit entsprechender Vergrößerung der Ansprechzeit.

Das Diagramm in Abb. 5 zeigt den Statistischen Fehler der **Thoron-Messung bei bis zu 100-facher Radonkonzentration**. Die Abhängigkeit vom vorliegenden Wert der Thoron Konzentration (absolute Anzahl der detektierten Zerfälle) ist als Parameter dargestellt.

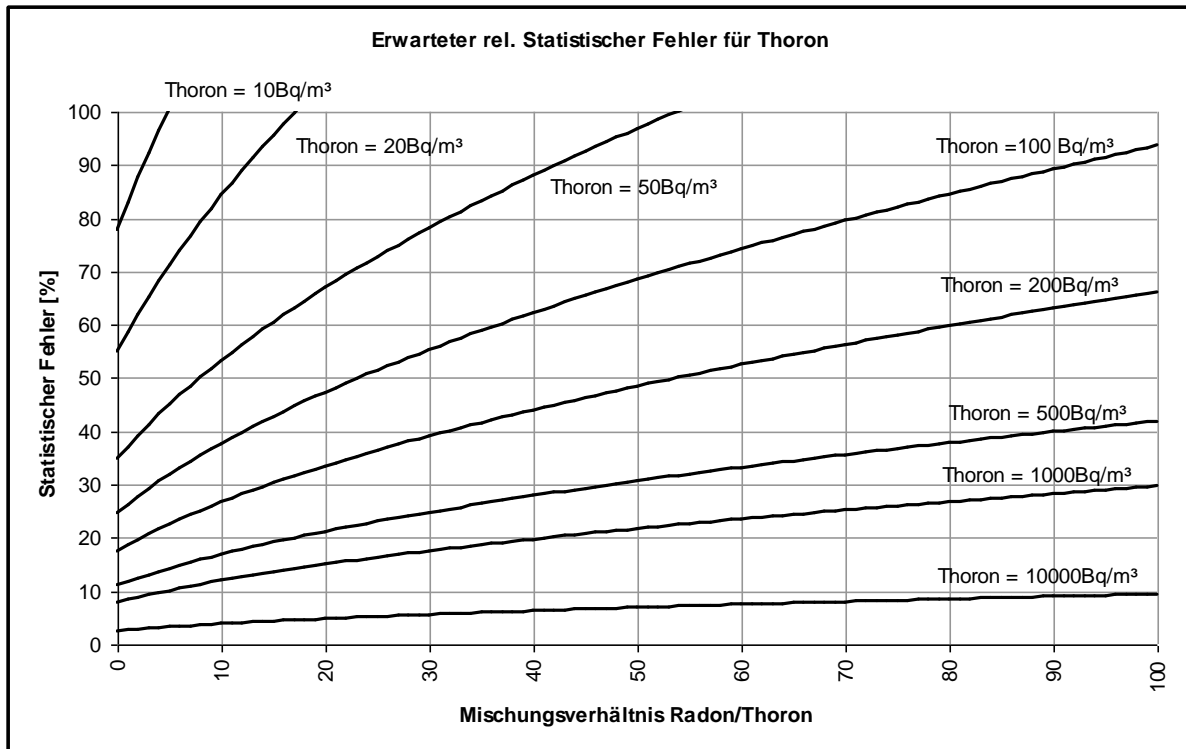


Abb. 4 Statistischer Fehler (1σ) für Thoron (RTM1688-2, 60 Minuten Messintervall)

Beispiel:

Bei einer Thoron-Konzentration von 1000 Bq/m³ und einer 40-fach höheren Konzentration des Radon (40000 Bq/m³) ergibt sich für die Thoron-Messung ein statistischer Fehler von ca. 20%.

Das Diagramm in Abb. 5 zeigt den Statistischen Fehler der **Radon-Messung bei bis zu 100-facher Thoron-Konzentration**. Die Abhängigkeit vom vorliegenden Wert der Radonkonzentration (absolute Anzahl der detektierten Zerfälle) ist als Parameter dargestellt.

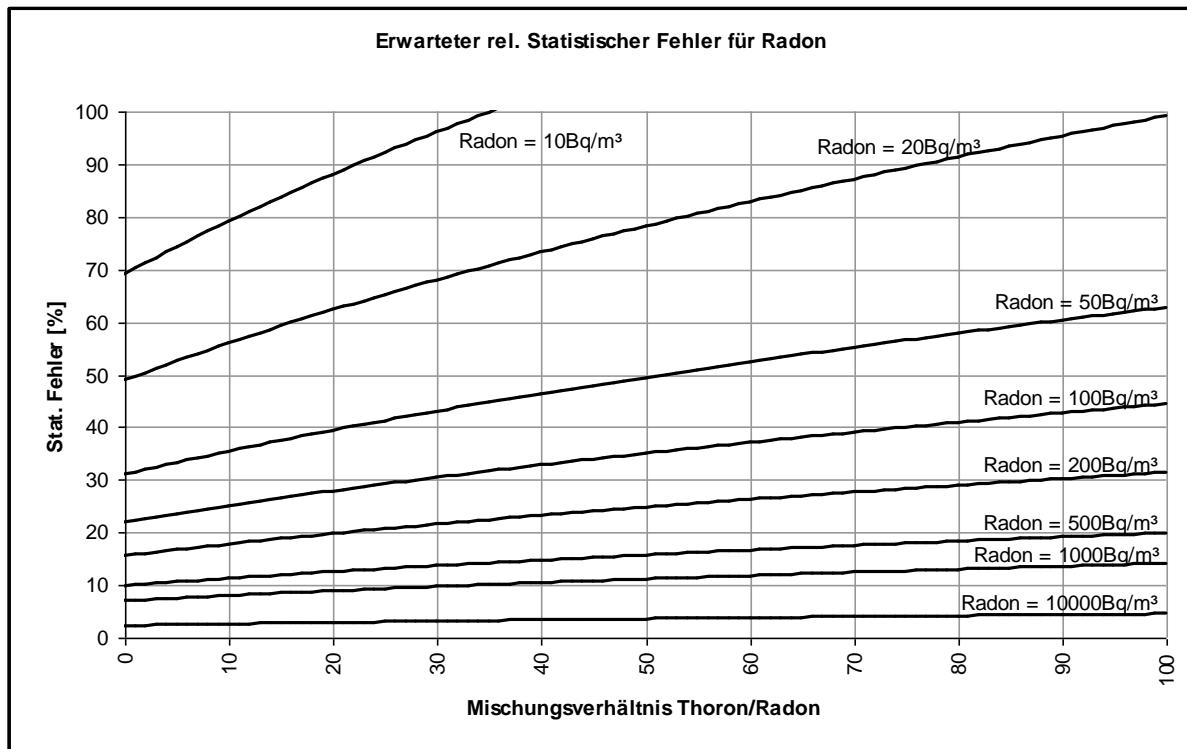


Abb. 5 Statistischer Fehler (1σ) für Radon (RTM1688-2, 60 Minuten Messintervall)

Beispiel:

Bei einer Radonkonzentration von 200 Bq/m^3 und einer 20-fach höheren Thoron-Konzentration (4000 Bq/m^3) ergibt sich für die Radonmessung ein statistischer Fehler von ca. 20%.

Probleme können immer dann auftreten wenn nach der Messung von hohen Thoron Konzentrationen geringe Radonkonzentrationen gemessen werden sollen. Nach der Thoron Exposition befindet sich noch Pb-212 auf der Detektoroberfläche. Dessen Aktivität klingt mit einer Halbwertszeit von 10,64 Stunden ab. Während dieser Zeit werden demzufolge ständig die Nuklide Po-212 und Bi-212 generiert. Deren Zerfälle führen zu einem Untergrund für die Radonmessungen auch, wenn schon lange kein Thoron mehr in der Messluft enthalten ist.

Deshalb sollten die folgenden Hinweise beachtet werden:

Messkampagnen an Messstellen beginnen, bei denen die geringsten Konzentrationen zu erwarten sind. Bei Messungen in Gebäuden ist die höchste Konzentration im Keller zu erwarten während sie in den oberen Geschossen abnimmt.

Bodenluftmessungen immer als letztes und so zügig wie möglich durchführen, da hier sowohl hohe Konzentrationen als auch sehr oft signifikante Mengen von Thoron zu erwarten sind.

Zeiten für die Probenahme bei hohen Thoron-Konzentrationen kurz halten. Die Messkammer ist bereits nach 5 bis 6 Minuten vollständig mit der Probenluft befüllt. Diese Zeit ist hinreichend um die Thoron-Konzentration zu bestimmen. Danach kann die Messkammer durch ein kurzes Schlauchstück kurzgeschlossen und eine neue Messung zur Bestimmung der Radonkonzentration gestartet werden.

Wenn möglich sollte nach erhöhter Thoron-Exposition mit dem Beginn einer neuen Messkampagne mehrere Tage gewartet werden, so dass Po-212 und Bi-212 abklingen können.

In einer Messreihe nur vereinzelt auftretende Konzentrationswerte deuten immer auf eine Messung mit erhöhtem Untergrund hin. Es ist dann davon auszugehen, dass keine tatsächliche Konzentration vorliegt sondern es sich dabei um die 5% der fälschlicherweise als Messwert interpretierten Schwankungen des Untergrundes handelt. Die Bildung eines Mittelwertes über einige Perioden links und rechts der Ausreißer liefert dann meist ein Resultat unterhalb der Erkennungsgrenze.