

**Entwicklung einer praxisnahen
Prüfmethode zur Bestimmung der
Radon-Exhalation aus Bauprodukten**

T 3277

T 3277

Dieser Forschungsbericht wurde mit modernsten Hochleistungskopierern auf Einzelanfrage hergestellt.

Die in dieser Forschungsarbeit enthaltenen Darstellungen und Empfehlungen geben die fachlichen Auffassungen der Verfasser wieder. Diese werden hier unverändert wiedergegeben, sie geben nicht unbedingt die Meinung des Zuwendungsgebers oder des Herausgebers wieder.

Die Originalmanuskripte wurden reprotechnisch, jedoch nicht inhaltlich überarbeitet. Die Druckqualität hängt von der reprotechnischen Eignung des Originalmanuskriptes ab, das uns vom Autor bzw. von der Forschungsstelle zur Verfügung gestellt wurde.

© by Fraunhofer IRB Verlag

2012

ISBN 978-3-8167-8723-5

Vervielfältigung, auch auszugsweise,
nur mit ausdrücklicher Zustimmung des Verlages.

Fraunhofer IRB Verlag

Fraunhofer-Informationszentrum Raum und Bau

Postfach 80 04 69

70504 Stuttgart

Nobelstraße 12

70569 Stuttgart

Telefon (07 11) 9 70 - 25 00

Telefax (07 11) 9 70 - 25 08

E-Mail irb@irb.fraunhofer.de

www.baufachinformation.de

Bitte beachten:

Fehlende Seiten sind **Leerseiten**,
die bei Erstellung
der PDF-Datei für den Download nicht
berücksichtigt wurden

Fraunhofer IRB Verlag

Entwicklung einer praxisnahen Prüfmethode zur Bestimmung der Radon-Exhalation aus Bauprodukten

von

Dr. Oliver Jann ¹⁾, Dr. Matthias Richter ¹⁾, Dr. Joachim Kemski ²⁾, Dr. Ralf Klingel ²⁾,
Uwe Schneider ¹⁾, Christian Krockner ¹⁾

¹⁾ BAM Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung
Fachbereich 4.2 Materialien und Luftschadstoffe

²⁾ Kemski & Partner
Beratende Geologen, Bonn



Institutsleiter

Prof. Dr. M. Hennecke

Im Auftrag

des Deutschen Instituts für Bautechnik (DIBt)

Förderungsnummer: ZP 52-5- 20.57-1355/10

April 2012

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	3
Abbildungsverzeichnis	5
Tabellenverzeichnis	7
1 Einleitung	9
1.1 Hintergrund und Aufgabenstellung	9
1.2 Radon in der Innenraumluft	10
1.3 Definitionen	12
1.4 Messverfahren zur Bestimmung der Radonexhalation	12
1.4.1 Halbkugelverfahren mittels elektrostatischer Abscheidung	13
1.4.2 Emanationsmessungen mit Szintillationskammern (statisches Verfahren)	14
1.4.3 Emanationsmessungen mittels Zweifiltermethode (dynamisches Verfahren)	15
1.4.4 Radonmessung in VOC-Kammern	16
1.4.5 Bestehendes genormtes Messverfahren zur Bestimmung der Radonexhalation aus Bauprodukten	16
2 Anforderungen an eine standardisierte Methode zur Bestimmung der Radonexhalation aus Bauprodukten	19
2.1 Anforderungen an Probenvorbereitung bzw. Prüfkörper	19
2.2 Anforderungen an Prüfkammer und Messgerät	19
2.3 Anforderungen an die Messung	20
2.4 Auswahl eines geeigneten Verfahrens	21
3 Methodischer Teil	23
3.1 Verwendete Geräte und Materialien	23
3.1.1 Prüfkammern	23
3.1.1.1 Glasexsikkatoren	23
3.1.1.2 1 m ³ -Kammer	24
3.1.2 Messgeräte	25
3.1.2.1 ATMOS 12 DPX	25
3.1.2.2 RADIM 3 A	26
3.1.2.3 RADONSCOUT	27
3.1.3 Einschränkungen bei der externen Messung mit dem ATMOS 12 DPX	28
3.1.4 Materialien	30
3.2 Untersuchungen zur Geochemie und Radonexhalation	32
3.2.1 Messung der spezifischen Radionuklidaktivitäten	32
3.2.2 Messung der Radonexhalation	33
3.2.2.1 Messung der Radonexhalation durch Kemski & Partner	33
3.2.2.2 Messung der Radonexhalation durch BfS	37
3.2.2.3 Vergleich der Radonexhalationsmessungen und Diskussion	38
3.3 Untersuchungen zur Vorbereitung der Exhalationsmessungen in den VOC-Prüfkammern	39
3.3.1 Messung der Radonhintergrundkonzentration in den Prüfkammern	40
3.3.2 Luftwechsel	42
3.3.2.1 Durchführung von Luftwechselfmessungen	43
3.3.2.2 Luftwechselfmessung an der 1 m ³ -Prüfkammer	43
3.3.2.3 Luftwechselfmessung in Kleinprüfkammer (22 L -Glasexsikkator)	44
3.3.3 Beeinflussung der Exhalationsmessung durch Luftdruckschwankungen	46
3.4 Durchführung von Exhalationsmessungen	49

3.4.1	Messung der Radonexhalation von Leichtbetonsteinen in der 1 m ³ -Kammer	49
3.4.1.1	Separate Anordnung	49
3.4.1.2	Kompakte Anordnung	50
3.4.1.3	Messungen in Kleinprüfkammer	51
3.4.2	Änderung der Messposition des RADIM 3 A	53
3.5	Abdichtungsmaßnahmen	54
4	<i>Darstellung und Diskussion der Ergebnisse der Exhalationsmessungen</i>	55
4.1	Messungen in der 1 m ³ -Kammer	55
4.2	Messungen in der Kleinprüfkammer	58
4.3	Betrachtungen zur Abhängigkeit der Radonexhalationsrate bei unterschiedlichen Beladungen, Luftwechselraten bzw. spezifischen Luftdurchflussraten	60
4.3.1	Ableitung eines Modells zur Berechnung der Radonexhalationsrate bei realitätsnahen Luftwechselraten	62
4.4	Ergebnis der Versiegelungsversuche	65
4.5	Abhängigkeit des Messwertes vom Messort	66
5	<i>Zusammenfassung</i>	67
5.1	Schlussfolgerungen	69
6	<i>Vorschlag für ein Prüfverfahren</i>	71
7	<i>Literatur</i>	73

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 3.1: Glasexsikkator mit eingestelltem RADONSCOUT, Kammervolumen $V = 21,9 \text{ L}$	24
Abbildung 3.2: 1 m^3 -Prüfkammer, hier mit einer Lehmbauplatte beladen	25
Abbildung 3.3: ATMOS 12 DPX	26
Abbildung 3.4: RADIM 3 A	27
Abbildung 3.5: RADONSCOUT	27
Abbildung 3.6: Kontinuierliche Konzentrationsmessung mit dem ATMOS 12 DPX, Kammern statisch mit Soll-Luftwechsel $n = 0 \text{ h}^{-1}$ (Kammer A: Radon-„dicht“ verpackter Lehmstein, Kammer B: nicht verpackter gleicher Lehmstein)	28
Abbildung 3.7: Anstiege der Radonkonzentration der verwendeten Baumaterialien (Messungen Kemski & Partner)	35
Abbildung 3.8: Auftragung der Radonexhalationsrate gegen Ra-226-Aktivität (Kemski & Partner)	37
Abbildung 3.9: Vergleich der Radonexhalationsraten von Kemski & Partner gegen die des BfS	39
Abbildung 3.10: Verlauf der Radonhintergrundkonzentration in einer geschlossenen 1 m^3 -Prüfkammer bei ausgeschalteter Spülluft über einen Zeitraum von 13 Tagen	41
Abbildung 3.11: Auswirkung des Luftwechsels auf eine Radonexhalationsmessung mit Leichtbeton	44
Abbildung 3.12: Auswirkungen des durch das ATMOS 12 DPX verursachten Luftwechsels auf die Messung der Radonexhalation eines Lehmsteins. Die Konzentrationsangaben wurden durch Kurvenanpassung bestimmt.	45
Abbildung 3.13: Verläufe der Radonmaximalkonzentration einer in der 1 m^3 - Kammer vermessenen Lehmbauplatte sowie des parallel gemessenen Luftdrucks	47
Abbildung 3.14: Verläufe der Radonmaximalkonzentration von 8 in der 1 m^3 - Kammer vermessenen Leichtbetonsteinen sowie des parallel gemessenen Luftdrucks	48
Abbildung 3.15: 8 Leichtbetonsteine in 1 m^3 -Kammer einzeln auf durchlässigem Edelstahlpodest angeordnet	50
Abbildung 3.16: Anordnung der 16 Leichtbetonsteine in Kompaktbauweise	51
Abbildung 3.17: Leichtbetonstein in Kleinemissionskammer ($V = 21,9 \text{ L}$) bei $n \approx 0$ ($n = 0,13 \text{ d}^{-1}$) und Homogenisierung der Probenluft mittels Rührer	52
Abbildung 3.18: Positionsänderung des RADIM 3 A vom Kammerboden in das obere Kammerviertel	53
Abbildung 3.19: Lehmstein komplett doppelt umwickelt in aluminiumkaschierter Kunststoffverbundfolie (links) und in kaltselbstklebender Bitumenbahn (rechts)	54
Abbildung 4.1: Konzentrationsverläufe der Messreihen mit Leichtbeton in der 1 m^3 -Kammer bei $n \approx 0 \text{ h}^{-1}$ über einen Zeitraum von mindestens 3 Wochen	56
Abbildung 4.2: Vergleich der Radonexhalationsraten der BAM gegen die von Kemski & Partner und BfS	59
Abbildung 4.3: Auftragung der Werte der Radonkonzentrationsmessungen von Leichtbeton in der 22 L - sowie 1 m^3 -Kammer über die	

	entsprechenden flächen- bzw. massebezogene Luftdurchflussraten unter Einbezug des effektiven Luftwechsels bestehend aus Luftwechsel in den Prüfkammern und der Radon- Zerfallskonstante ($n_{\text{eff}} = 0,013 \text{ h}^{-1}$ in der 22 L -Kammer und $n_{\text{eff}} = 0,0088 \text{ h}^{-1}$ in der 1 m ³ -Kammer)	60
Abbildung 4.4:	Auftragung der Werte der Radonkonzentrationsmessungen von Leichtbeton in der 22 L- sowie 1 m ³ -Kammer über die entsprechenden flächen- bzw. massebezogenen Beladungsfaktoren	61
Abbildung 4.5:	Vergleich der Verläufe der Radonkonzentrationen bei einer Messung am Kammerboden (links) und im oberen Kammerviertel (rechts)	66

Tabellenverzeichnis

Tabelle 3.1: Zu Messzwecken verwendete Materialien	31
Tabelle 3.2: Radionuklidaktivitäten von Ra-226, Th-232 und K-40 in den verwendeten Baumaterialien	33
Tabelle 3.3: Ergebnisse der Bestimmung der Radonexhalationsrate nach der Methode von Kemski & Partner	36
Tabelle 3.4: Berechnung der flächenbezogenen Exhalationsrate ER_A aus gemessenen spezifischen Materialparametern	38
Tabelle 3.5: Gegenüberstellung der Exhalationsmessungen nach den Methoden von Kemski & Partner und des BfS	38
Tabelle 4.1: Ergebnisse der Messreihen mit Leichtbeton zur Konzentrationsbestimmung. Zusätzlich sind die Werte der flächen- und massebezogenen Luftdurchflussraten q_A und q_m sowie die Beladungsfaktoren L_A und L_m angegeben. Der „natürliche“ Kammerluftwechsel wurde mit $0,0012 \text{ h}^{-1}$ bestimmt. Es ergibt sich ein Gesamtluftwechsel von $0,0088 \text{ h}^{-1}$.	57
Tabelle 4.2: Ergebnisse der Messungen in der Kleinprüfkammer ($V = 22 \text{ L}$). Zusätzlich sind die Werte der flächen- und massebezogenen Luftdurchflussraten q_A und q_m sowie die Beladungsfaktoren L_A und L_m angegeben. Der „natürliche“ Kammerluftwechsel wurde mit $0,0052 \text{ h}^{-1}$ bestimmt. Es ergibt sich ein Gesamtluftwechsel von $0,013 \text{ h}^{-1}$.	58
Tabelle 4.3: Flächen- und massebezogene Radonexhalationsraten. Vergleich zwischen BAM-, Kemski & Partner- sowie BfS-Methode. Die massenspezifischen Exhalationsraten dienen lediglich der Information.	59
Tabelle 4.4: Parameter für betrachtete Modellräume	63
Tabelle 4.5: Materialparameter	64
Tabelle 4.6: Extrapolierte Radonkonzentrationen $c_{Rn,Modellraum} [\text{Bq}/\text{m}^3]$ mit dazugehörigen massen- und flächenbezogenen Emissionsraten $ER_{m,Modellraum} [\text{Bq}/\text{kg h}]$ und $ER_{A,Modellraum} [\text{Bq}/\text{m}^2 \text{ h}]$. Die rot markierten Werte des Kompaktziegel wurden außerhalb des Gültigkeitsbereichs ($q_{m,Messung} = 0,00004 \text{ m}^3/\text{kg h}$) bestimmt und sind daher nur zur Information aufgeführt.	64
Tabelle 4.7: Radonkonzentrationen, die trotz Probenversiegelung mit verschiedenen Materialien festgestellt wurden.	65

1 Einleitung

1.1 Hintergrund und Aufgabenstellung

Die Strahlenexposition durch Bauprodukte kann eine gesundheitliche Gefährdung für die Bewohner und Nutzer der betreffenden Gebäude darstellen. Man unterscheidet zwischen einer äußeren Strahlenexposition (Gammastrahlung der in den Baumaterialien enthaltenen natürlich vorkommenden Radionuklide K-40, Th-232 und U-238 bzw. Ra-226) und einer inneren Strahlenexposition (Radonexhalation aus dem Baumaterial mit anschließender Inhalation von Radon und seinen Folgeprodukten).

Im Rahmen eines Forschungsvorhabens des DIBt wurden Bewertungskriterien zur Identifizierung von Baustoffgruppen mit erhöhter Radioaktivität erarbeitet [1]. Für die praktische Umsetzung bei der zukünftigen Prüfung von Bauprodukten im Rahmen des DIBt-Zulassungsverfahrens wurde dazu ein Ablaufschema erstellt, das die Bewertung eines Bauproduktes hinsichtlich seines Beitrages zur äußeren und inneren Strahlenbelastung in Gebäuden ermöglicht.

Das Bewertungsschema ist so konzipiert, dass eine schrittweise Prüfung ausgewählter Inhaltsstoffe von Bauprodukten anhand von Listen oder Prüfwerten erfolgt. Prüfkriterien sind beispielsweise die spezifischen Uran- und Thoriumaktivitäten der Inhaltsstoffe, mögliche Anreicherungen dieser Nuklide in den originären Lagerstätten dieser Inhaltsstoffe, die Radionuklidanreicherung während technischer Prozesse, aber auch die Betrachtung einer möglichen Radonexhalation. Letztere ist aber nur für Materialien aus bestimmten Bauproduktgruppen relevant, wobei auch die Art der Verbauung der Materialien eine Rolle spielt. Nach derzeitigem Kenntnisstand zählen hierzu Lehm und Ton im Lehm- und Tonbau, Leichtbeton sowie Bauprodukte mit Schieferanteilen.

Für die Bewertung der Radonexhalation ist ein praxistaugliches Mess- bzw. Prüfverfahren zu entwickeln, um vergleichbare Ergebnisse zu gewährleisten. Die derzeit bestehenden Messverfahren sind nicht vereinheitlicht und basieren überwiegend auf der Bestimmung der Radonemanation, woraus dann die eigentlich interessierende Radonexhalationsrate auf rechnerischem Weg ermittelt wird.

Die Randbedingungen dieses Verfahrens sind eher praxisfern, da sie die tatsächlichen, physikalischen Bedingungen des Bauproduktes (Struktur, Dichte, Diffusionseigenschaften etc.) und dessen räumliche Umgebung (Temperatur, Luftfeuchtigkeit, Raumbeladung, Luftwechsel, Luftströmungsgeschwindigkeit) nicht berücksichtigen. Die real auftretenden Radonexhalationen und damit zu erwartende Radonbelastungen in Innenräumen können daher unter Umständen erheblich von den abgeleiteten, berechneten Werten abweichen.

Daher soll ein realitätsnahes Prüfverfahren unter praxisähnlichen Bedingungen entwickelt werden. Der Forschungsansatz ist die Kombination eines bestehenden Messverfahrens zur Ermittlung der VOC-Emissionen aus Bauprodukten mit vorhandenen Radonmessverfahren für die Raumluft. Das VOC-Messverfahren ist bereits in die DIBt-Zulassungsgrundsätze eingeführt und international standardisiert (DIN EN ISO 16000-9, DIN ISO 16000-3, DIN ISO 16000-6) [2-4].

Durch das Kammerverfahren nach DIN EN ISO 16000-9 ist die VOC-Bestimmung unter definierten Bedingungen [Temperatur (23 °C), relative Luftfeuchtigkeit (50 % r. F.), Luftdurchflussrate (q [$\text{m}^3/\text{m}^2\text{h}$]), Luftströmungsgeschwindigkeit (0,1-0,3 m/s)] gewährleistet. Die Vorteile und Praxisnähe dieser definierten Bedingungen sollten auch für die Radonexhalation berücksichtigt werden. Statt der bei VOC einzusetzenden Probenahme und Analytik nach DIN ISO 16000-3 und -6 sollen geeignete, ausreichend empfindliche Radonmessverfahren ermittelt und erprobt werden, die mit den üblichen Emissionsmesskammern kombiniert werden können. Mit einer solchen als geeignet befundenen Kombination sollen erste Messungen zur Radonexhalation an ausgewählten Bauprodukten durchgeführt werden.

1.2 Radon in der Innenraumluft

Dem radioaktiven Edelgas Radon-222 (^{222}Rn) in der Innenraumluft ist in den letzten Jahren mehr Gewicht beigemessen worden. Dies ist vor allem auf die zunehmende Luftdichtheit von Gebäuden unter dem Aspekt der Energieeinsparung zurückzuführen.

Radon gilt heute als zweitwichtigste Ursache für Lungenkrebs nach dem Rauchen [5]. Dabei ist zu beachten, dass Radon als inertes Edelgas nicht die eigentliche Ursache darstellt, sondern seine kurzlebigen, an Aerosole angelagerten Zerfallsprodukte wie ^{218}Po bis ^{214}Po [6], die sich in den Lungenbläschen festsetzen können. Ferner sorgt die beim Zerfall freigesetzte ionisierende Strahlung, insbesondere α -Strahlung, für Gewebeschäden.

Radon ist das Zerfallsprodukt von Radium-226 (^{226}Ra), welches ubiquitär in der Natur vorkommt. Die Hintergrundbelastung des ^{222}Rn in der Umwelt ist regional verschieden. Kemski et al. haben in einer Studie einen signifikanten Zusammenhang zwischen der Radonkonzentration im Innenraum und der Konzentration in der Bodenluft festgestellt [7]. Der Bauuntergrund stellt daher in der Regel die wichtigste Quelle dar. Radon gelangt vornehmlich über undichte Stellen im Bauwerk in den Innenraum, z. B. Risse in der Bodenplatte, Hohlräume und Risse in Wänden.

Der baustoffbezogene Anteil an der Radonkonzentration in der Raumluft wird somit nicht nur durch die spezifische Radonexhalationsrate des Materials und die Größe der für eine Radonexhalation zur Verfügung stehenden Oberfläche beeinflusst. Ferner wird angenommen, dass das Vorhandensein von Leitungen, Steckdosen und anderen Wanddurchbrüchen und deren nicht fachgerechte Abdichtung im Rahmen des baulichen Radonschutzes zu einer Erhöhung der Radonwerte im Gebäude führen können. Dieser mögliche Anteil ist durch eine unter idealisierten standardisierten Laborbedingungen bestimmte Radonexhalationsrate des Baumaterials kaum wiederzugeben.

Die Strahlenexposition des Menschen durch Bauprodukte ist in Deutschland im Strahlenschutzrecht nicht explizit geregelt. Strahlenschutzbelange bezüglich eines Baumaterials werden über das Bauproduktengesetz durch die Einhaltung der bautechnischen Anforderungen an die Verwendbarkeit und das Inverkehrbringen der Baustoffe geregelt [8]. Allerdings sind in ihm keine Richt- oder Referenzwerte für eine maximale äußere und innere Strahlenexposition des Raumnutzers und auch keine

Messverfahren definiert. Es ist lediglich festgeschrieben, dass er nicht durch die Emission gefährlicher Strahlen gefährdet werden dürfe. Ferner schreibt sie fest, dass aus Bauprodukten keine gefährlichen Gase und Teilchen freigesetzt werden dürfen.

Die EU-Empfehlung Radiation Protection 112 [9] zielt darauf ab, eine Obergrenze für die äußere Strahlenexposition von 1 mSv/a einzuhalten. Dieser Wert wird über den RP 112-Index, der aus den Radionuklidaktivitäten von ^{226}Ra , ^{232}Th und ^{40}K mittels einer Summenformel (Gleichung 1.1) berechnet wird, abgeschätzt. Überschreitungen der Obergrenze (Tabelle 1.1) werden nur in besonderen Ausnahmefällen toleriert, beispielsweise bei lokaler Nutzung traditionell seit langem verwendeter Baumaterialien mit erhöhten Radionuklidaktivitäten.

$$I = \frac{C_{Ra}}{300\text{Bqkg}^{-1}} + \frac{C_{Th}}{200\text{Bqkg}^{-1}} + \frac{C_K}{3000\text{Bqkg}^{-1}} \quad (1.1)$$

mit

C_{Ra} , C_{Th} , C_K Aktivitätskonzentrationen von Radium, Thorium und Kalium in Bq/kg

Tabelle 1.1: Indexobergrenzen für bestimmte Materialien

Dosiskriterium	0,3 mSv/a	1 mSv/a
In großen Mengen verwendete Materialien, z. B. Zement	$I \leq 0,5$	$I \leq 1,0$
Oberflächenmaterialien oder Materialien mit begrenztem Einsatz, z. B. Fliesen, Platten, etc.	$I \leq 2$	$I \leq 6$

Für die Bewertung der inneren Strahlenexposition des Menschen wird die Aktivitätskonzentration des ^{222}Rn zugrunde gelegt. Die Strahlenschutzbehörde der Europäischen Kommission (EURATOM) legt Referenzwerte fest hinsichtlich der Radonkonzentrationen, die im Innenraum nicht überschritten werden dürfen [10]:

- 200 Bq/m³ für Neubauten (Wohnungen / öffentliche Gebäude)
- 300 Bq/m³ für Wohnungsbestand
- 300 Bq/m³ für bestehende öffentliche Gebäude, in denen sich Menschen längere Zeit aufhalten (z. B. Schulen, Kindergärten, Gefängnisse)
- 1000 Bq/m³ für bestehende öffentliche Gebäude, in denen die Aufenthaltszeit geringer ist.

Diese Direktive befindet sich derzeit im Entwurfsstadium. Voraussichtlich ab 2014/2015 ist der Inhalt einer verbindlichen Richtlinie von den europäischen Mitgliedsstaaten zu ratifizieren. Dann besteht bei einer Überschreitung der Referenz-

werte Handlungsbedarf. Das ist besonders vor dem Hintergrund zu begrüßen, dass bereits bei Radonkonzentrationen zwischen 100 und 200 Bq/m³ das Lungenkrebsrisiko steigt [11]. Nach einer Empfehlung des BfS soll daher die Obergrenze für die Innenraumradonkonzentration bei einem Wert von 100 Bq/m³ für Deutschland festgeschrieben werden. Der Beitrag durch Bauprodukte soll dabei 20 Bq/m³ nicht überschreiten [12].

Damit Bauprodukte hinsichtlich ihrer Radonexhalationsraten bewertet werden können, ist eine geeignete Prüfmethode zu entwickeln. Untersuchungen hierzu wurden im Rahmen dieses Forschungsvorhabens durchgeführt und sind im Kapitel 3 beschrieben.

1.3 Definitionen

Back diffusion: Bezeichnet den Zeitpunkt, an dem sich aufgrund der Abnahme des Konzentrationsgradienten in der Prüfkammer ein Konzentrationsgleichgewicht einstellt. Der Begriff ist allerdings irreführend, da eine „Rückdiffusion“ des Radons in das Material praktisch unmöglich ist. Er ist jedoch in der einschlägigen Literatur zu finden.

Emanation: Radonfreisetzung aus der festen Phase in den umgebenden Porenraum oder in Mikrorisse des Materials. Die Höhe der Emanation ist abhängig von der Verteilung des Radiums im Mineralkorn sowie Korngröße und -form, Porengröße und -form und Porenfeuchte.

Emanationskoeffizient: Anteil der Radonatome, die aus dem Korn in ein von außen zugängliches Porensystem eingetreten sind und damit potentiell zur Exhalation zur Verfügung stehen.

Exhalation: Radonabgabe aus dem Festkörper heraus nach erfolgter Emanation (beinhaltet auch Diffusion bzw. Transport durch dessen Porenraum).

Exhalationsrate: Massen- oder flächenspezifische Radonabgabe pro Zeiteinheit.

Radonkonzentration: Alphaspektrometrisch gemessene Konzentration von Radonfolgeprodukten, z. B. ²¹⁸Po und ²¹⁴Po (je nach Messprinzip des Messgeräts), aus der auf die ursprünglich vorhandene Konzentration des Edelgases Radon geschlossen wurde.

Wandbildner: Hier im weiteren Sinne Baumaterialien, die beim Bau von Außen- und Innenwänden, Fußböden oder Geschossdecken zum Einsatz kommen.

1.4 Messverfahren zur Bestimmung der Radonexhalation

Im Folgenden werden verschiedene Methoden zur Bestimmung der Radonexhalation, wie sie in Deutschland zur Anwendung kommen, hinsichtlich ihrer Vor- und Nachteile diskutiert. Dabei steht ihre potentielle Eignung als Standardmessverfahren im Fokus.

Vier Methoden, die im Rahmen der Sitzungen der Projektgruppe „Radonaktivität/Radonexhalation“ des DIBt in den engeren Kreis für die Auswahl eines möglichen Standardmessverfahrens aufgenommen und daraufhin in einem vorgegangenen

DIBt-Vorhaben mit ihren Vor- und Nachteilen beschrieben und erläutert wurden [13], werden im Folgenden diskutiert.

1.4.1 Halbkugelverfahren mittels elektrostatischer Abscheidung

Hierbei handelt es sich um ein elektrostatisches Abscheideverfahren, bei dem kurzzeitig elektrisch geladene Teilchen (Ionen) durch Anlegen einer Spannung auf einem Detektor gesammelt werden. Die dort stattfindenden Zerfälle werden anschließend alphaspektrometrisch ausgewertet. Es handelt sich um ein *flächenbezogenes* Exhalationsmessverfahren [14].

Die exhalierte Oberfläche des Probenmaterials wird von einer halbkugelförmigen Messkammer aus Aluminium überdeckt. Das Prüfkammervolumen beträgt 5 L. Geeignete Dichtungen am Rand der Halbkugel sollen einen Luftaustausch zwischen Messkammervolumen und der Umgebung verhindern. In der Messkammer befindet sich ein Oberflächensperrschichtdetektor. Für die Messung wird an der Halbkugel eine positive Hochspannung gegenüber der Detektoroberfläche angelegt, die ihrerseits auf Erde liegt. Zur Optimierung des elektrischen Feldes ist ein Metallgitter über der Probenoberfläche integriert. Die aus dem Probenmaterial tretenden Radonotope zerfallen in der Messkammer, die dabei entstandenen kurzzeitig positiv geladenen Poloniumionen (^{218}Po) werden durch die angelegte Spannung auf der Detektoroberfläche abgeschieden und zerfallen dort weiter. Diese Zerfälle können in regelmäßigen, aufeinander folgenden Zeitintervallen gezählt und alphaspektrometrisch ausgewertet werden. Aus den Aktivitäten der Radonfolgeprodukte wird die Radonkonzentration bestimmt. Die Radonexhalation wird über den zeitlichen Anstieg aus dem Messkammervolumen und der Fläche des Probenkörpers ermittelt. Dabei kann eine angenähert lineare Anpassung über einen Teil des Kurvenanstiegs oder eine exponentielle Anpassung über den gesamten Kurvenverlauf verwendet werden.

Die Dauer einer Messung beträgt mindestens 24 h, sollte jedoch bis zur Erfassung des vollständigen Anstiegs der Radonkonzentration in der Messkammer andauern. Die Nachweisgrenze wird mit $0,036 \text{ Bq/m}^2\text{h}$ angegeben [15].

Vorteil dieser Methode ist, dass aus dem zeitlichen Anstieg der Radonkonzentration bei definiertem Volumen und definierter Probenoberfläche direkt die Exhalationsraten berechnet werden können. Eine relativ realitätsnahe, flächenbezogene Messung ist möglich.

Als nachteilig bzw. problematisch steht dem gegenüber, dass Undichtigkeiten an der Nahtstelle zwischen Probenkörper und Messapparatur unbedingt vermieden werden müssen, um eine Vermischung der Messraumluft mit Außenluft zu vermeiden. Im Verlauf dieser Arbeit wird noch beschrieben, welche Herausforderung eine zuverlässige Abdichtung darstellt (Abschnitt 3.3.2). Insbesondere bei einem relativ kleinen Prüfkammervolumen beeinflussen etwaige Leckagen stärker die Messung als es bei einem größeren Messraum der Fall wäre.

Ein weiteres Problem, das im Zusammenhang mit dem kleinen Prüfkammervolumen steht, ist das der sogenannten „Back diffusion“. Das aus dem Probenkörper exhalierte Radon kann bei angenommener ausreichender Dichtigkeit der Kammer nicht entweichen und reichert sich in ihr an. Die diffusionsgesteuerte Radonexhalation, die

zunächst aus dem „radonhaltigen“ Baumaterial in die „radonfreie“ Messkammerluft erfolgt, nimmt dementsprechend ab. Bei Erreichen eines Gleichgewichts zwischen der Radonkonzentration im Porenraum des Prüfkörpers und der Luft im Messraum findet keine nennenswerte Konzentrationserhöhung mehr statt. Messungen in diesem Zustand unterschätzen die tatsächliche Radonexhalationsrate [16]. Abhilfe kann geschaffen werden, indem das Messraumvolumen so gewählt wird, dass es ein Vielfaches des Porenvolumens des Prüfkörpers beträgt. Dadurch würde eine Exhalation in einen unendlich ausgedehnten Raum mit sehr geringer Radonkonzentration simuliert.

Die Abscheiderate der Poloniumionen auf der Detektoroberfläche ist feuchtigkeitsabhängig. Mit zunehmender Feuchtigkeit verringert sich die Rate, weil es zur Clusterbildung von Poloniumionen und Wassermolekülen kommt. Deren Mobilität im elektrischen Feld kann dann zu gering sein, um auf der Detektoroberfläche abgeschieden zu werden. Es ist daher darauf zu achten, dass Schwankungen der relativen Luftfeuchtigkeit ausgeschlossen sind.

1.4.2 Emanationsmessungen mit Szintillationskammern (statisches Verfahren)

Diese Methode basiert auf der Messung des Emanationskoeffizienten und der anschließenden Berechnung der Radonexhalationsrate. Die Methode unter Verwendung von Szintillationszellen wird in der Literatur als eine der zuverlässigsten beschrieben [6]. Im Folgenden wird auf die Spezifika der Messmethode, wie sie beim Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) angewandt wird, eingegangen.

Bei der hier beschriebenen Methode handelt es sich um ein *massebezogenes* Exhalationsmessverfahren. Das Probenmaterial wird auf eine definierte Korngröße zerkleinert und anschließend unter definierten Bedingungen getrocknet. Die maximale Korngröße muss dabei wesentlich kleiner als die Radondiffusionslänge im Material sein, um einen vollständigen diffusiven Radonaustritt aus dem Porenraum des Materials in die Luft im Probengefäß zu gewährleisten. Beim BfS-Verfahren werden Proben in aller Regel auf Korngrößen unter 4 mm zerkleinert. Das Material wird in ein gasdichtes Probengefäß definierten Volumens eingebracht. Durch den Radiumzerfall im Material erfolgt die Radonfreisetzung in den (offenen) Porenraum. Nach etwa 12 Tagen sollte sich ein annäherndes Gleichgewicht zwischen Radonbildung und -zerfall in dem Gefäß zu mehr als 90 % eingestellt haben. Dabei wird von der „Faustregel“ ausgegangen, dass bis zum Erreichen des vollständigen Gleichgewichts („Sättigungskonzentration“), bei der sich Radonnachbildung und Zerfall die Waage halten, ein Zeitraum von etwa 38 Tagen verstreichen müsste. Das entspricht ca. 10 Halbwertszeiten von Radon. Für die Messung wird Luft aus dem Probengefäß in eine vorher evakuierte Szintillationszelle geleitet und nach ca. drei Stunden mittels eines Szintillationszählers die Radonkonzentration ermittelt.

Bei Kenntnis des Volumens der Szintillationskammer und der darin gemessenen Radonkonzentration kann zunächst die Aktivitätskonzentration im Probengefäß und dann unter Einbeziehung der Probenmasse sowie der zusätzlich zu bestimmenden

spezifischen Radiumaktivität des Materials der Emanationskoeffizient berechnet werden. In einem zweiten Rechenschritt wird aus diesem sowie der spezifischen Radiumaktivität, der Materialdichte und der Probendicke die flächenbezogene Radonexhalationsrate ermittelt.

Die Messunsicherheit bei dieser Vorgehensweise wird mit ca. 30 % abgeschätzt, zusammengesetzt aus einer Messunsicherheit von 10 % durch Adsorptionsverluste und 20 % für Leckverluste durch Undichtigkeiten der Messgefäße.

Die Methode besitzt den Vorteil, dass Proben von Baumaterialien aller Art einheitlich unter gleichen Randbedingungen (z. B. Temperatur, Luftfeuchtigkeit) aufbereitet werden können (z. B. Masse, Korngröße, Trocknungsgrad). Somit ist eine unmittelbare Vergleichbarkeit dieser massebezogenen Messwerte gegeben.

Als wesentlicher Nachteil ist hier zu betrachten, dass die Radonexhalationsrate nicht direkt gemessen wird, sondern über die Messung der Emanation errechnet wird. Das kann nur in gewisser Näherung die Exhalationsrate unter realistischen Bedingungen widerspiegeln. Es ist zu befürchten, dass man durch die Aufhebung bzw. Zerstörung des mineralischen Gitterverbundes bei der Probenaufbereitung eine erhöhte Radonfreisetzung hervorruft, die bei der ursprünglichen Gestalt des Baumaterials nicht erreicht würde.

1.4.3 Emanationsmessungen mittels Zweifiltermethode (dynamisches Verfahren)

Bei dieser vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) angewendeten Methode wird ebenfalls der Emanationskoeffizient bestimmt, woraus dann im Anschluss unter Berücksichtigung der ^{226}Ra -Aktivität und definierter Randbedingungen, wie der Dichte des Baumaterials und der Dicke der Wände die Radonexhalationsrate berechnet wird. Im Gegensatz zu der im Abschnitt 1.4.2 beschriebenen Methode ist es freigestellt, ob der Prüfkörper im zerkleinerten oder in seinem für die praktische Anwendung bestimmten Zustand vermessen wird.

Die Probe wird in ein gasdichtes Probengefäß definierten Volumens eingebracht, das kontinuierlich mit gealtertem Stickstoff aus der Druckgasflasche bei konstantem Volumenstrom gespült wird. Durch den sofortigen Abtransport des Radons nach seiner Freisetzung aus dem Probengefäß wird die Konzentration in der Nähe der Probenoberfläche niedrig gehalten, so dass „Back diffusion“ vernachlässigt werden kann. Die radonhaltige Luft strömt danach in eine Messkammer, in der die Radonmessung erfolgt. Vor dem Eintritt in die Kammer werden die in der Luft befindlichen angelagerten Radonfolgeprodukte durch einen Filter zurückgehalten, so dass ausschließlich Radon in die Messkammer gelangt. Auf einem zweiten Filter (Messfilter) werden dann die in der Kammer gebildeten Radonfolgeprodukte abgeschieden und alphaspektrometrisch mittels eines Oberflächen-sperrschichtdetektors gemessen. Hierbei wird die Aktivität des ^{214}Po für die Auswertung herangezogen.

Die Gesamtmessunsicherheit für dieses Verfahren wird mit ca. 40 % abgeschätzt (BfS-Angabe).

Die Vorteile sind ähnlich denen der statischen Methode, wobei durch den kontinuierlichen Abtransport des Radongases von der Probenoberfläche das Phänomen der „Back diffusion“ vernachlässigbar wird. Durch Einleiten eines kontinuierlichen Spülstroms wird vermieden, dass Radon akkumuliert wird.

Als Nachteile sind der entsprechend größere Aufwand gegenüber dem statischen Messverfahren und die hohe Messunsicherheit zu nennen. Aufgrund der durch den Spülstrom verursachten Verdünnung des Probengases ist davon auszugehen, dass sehr niedrige Radonkonzentrationen erfasst werden müssen. Das Messverfahren muss daher eine hohe Sensitivität aufweisen. Ferner wird für die Spülung ein möglichst radonfreies Gas benötigt.

1.4.4 Radonmessung in VOC-Kammern

Die Untersuchung der Eignung dieses Verfahrens soll Gegenstand dieses Forschungsvorhabens sein. Vor einigen Jahren sind erste Versuche von der BAM Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung in Zusammenarbeit mit dem Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) durchgeführt worden. Hier kamen VOC-Messkammern für die Bestimmung der Radonexhalationsrate von Baustoffen zum Einsatz [17].

Vorteil der Methode ist, dass die Prüfung unter realitätsnahen Raumklimabedingungen (Temperatur, relative Luftfeuchtigkeit, Luftwechselrate) durchgeführt werden kann. Das Material kann unverändert oder auch zerkleinert untersucht werden, so dass sowohl eine flächen- als auch massebezogene Exhalationsmessung in Frage käme. Um aber eine wirklich realitätsnahe Exhalationscharakteristik zu erhalten, sollte die zerstörungsfreie Prüfung im Vordergrund stehen.

Zwei Verfahren kommen in Betracht. Das Probenmaterial kann einerseits im statischen „Umluftverfahren“ untersucht werden, wobei sich Radon stetig in der Messkammer anreichert. Ein weiteres, der Praxis stärker entsprechendes Verfahren ist das „Abluftverfahren“, bei dem die Kammer mit einem radonarmen Gas durchströmt wird und ein Luftaustausch erfolgt. Hierbei wird der Luftwechsel, wie er in Innenräumen vorliegt, simuliert. Die Radonkonzentration kann im Abluftstrom oder direkt im Prüfraum gemessen werden. Nachteilig kann sich gerade bei der Prüfung niedrig exhalierender Materialien die häufig recht hoch liegende Nachweisgrenze kommerziell erhältlicher Radonmessgeräte erweisen. Durch die Spülluft erfolgt im Allgemeinen Verdünnung der Messluft.

1.4.5 Bestehendes genormtes Messverfahren zur Bestimmung der Radonexhalation aus Bauprodukten

Die niederländische Prüfnorm NEN 5699 [18] ist derzeit die einzige Verfahrensanleitung zur Bestimmung der Radonexhalationsrate aus Bauprodukten. Sie bezieht sich ausschließlich auf die ^{222}Rn -Exhalation.

Die Proben werden bei einer Temperatur von $20\text{ °C} \pm 2\text{ K}$ und einer relativen Luftfeuchtigkeit von $50\% \pm 5\%$ konditioniert. Die Prüfung findet im Anschluss an die Konditionierungsphase in einem geeigneten Exhalationsgefäß bei den gleichen klimatischen Bedingungen statt.

Ziel ist die Bestimmung der freien Radonexhalationsrate, die in der Norm als Exhalationsrate unter der Bedingung definiert ist, bei der die Radonaktivität an der Probenoberfläche gleich null ist. Dieser Zustand soll durch Spülung der Exhalationskammer mit Stickstoff erreicht werden, wobei der Luftwechsel größer als die Zerfallsrate des Radons ($\lambda_{Rn} = 0,00755 \text{ h}^{-1}$) zu wählen ist. Nachdem das freie Kammervolumen, definiert als das Kammervolumen abzüglich des Probenvolumens, mindestens fünfmal ausgetauscht wurde, wird angenommen, dass die Radonaktivität im freien Kammer-volumen und in dem aus der Kammer tretenden Volumen konstant ist.

Die Messung der Radonaktivität mit anschließender Konzentrationsbestimmung erfolgt folgendermaßen: Hinter der Exhalationskammer wird nach einer Trocknungseinheit (KOH-Pellets als Trockenmittel) ein U-Rohr angeschlossen, das mit Silica-Gel als Adsorber gefüllt ist. Dieses befindet sich zusätzlich in einem mit Flüssigstickstoff gekühlten Gefäß. Das aus der Exhalationskammer austretende Stickstoff-Radon-Gemisch wird über den Adsorber geleitet, wobei das Radon abgeschieden wird.

Im Anschluss wird das Adsorbens in die Szintillationsflüssigkeit überführt, in die das Radon übertritt. Die Vermessung der Radonaktivität in der Flüssigkeit erfolgt mittels eines Szintillationszählers.

Diese Prüfmethode stellt eine gute Möglichkeit dar, die Radonaktivität zu bestimmen, die in einem bestimmten Raumluftvolumen herrscht, woraus dann auf die Radonexhalationsrate aus einem Bauprodukt geschlossen wird. Sie entspricht in etwa der dynamischen Zweifiltermethode (vgl. Abschnitt 1.4.3), wobei jedoch hier der Prüfkörper in dem Zustand geprüft wird, in dem er auch verbaut wird. Dennoch handelt es sich um eine indirekte Messmethode. Um das gewünschte Messergebnis zu erhalten sind aufarbeitende Zwischenschritte vonnöten, die zwangsläufig das Messunsicherheitsbudget erhöhen.

2 Anforderungen an eine standardisierte Methode zur Bestimmung der Radonexhalation aus Bauprodukten

In diesem Vorhaben soll eine Prüfmethode entwickelt werden, die eine realitäts- bzw. praxisnahe Bestimmung der Radonexhalationsrate aus Baumaterialien erlaubt. Folgende allgemeine Anforderungen werden dafür definiert:

1. Es sollte eine direkte Messung der Radonexhalationsrate möglich sein.
2. Die Radonexhalationsrate sollte unter denjenigen Bedingungen bestimmt werden, die der praktischen Nutzung und späteren Verbauung entspricht.
3. Die zu entwickelnde Methode sollte für alle gängigen Bauprodukte anwendbar sein. Insbesondere im Hinblick auf die Verschiedenheit der Materialien (Festkörper und Schüttgüter bzw. Wandbildner und Oberflächenmaterialien) ist die Herstellung von Prüfstücken definierter Zusammensetzung, Form und Größe bedeutend.
4. Die Methode sollte möglichst einfach sein und routinemäßig von entsprechend ausgerüsteten Laboratorien vom dort beschäftigten Personal angewandt werden können.
5. Zur Messung sollten kommerziell erhältliche Radonmessgeräte eingesetzt werden können.

2.1 Anforderungen an Probenvorbereitung bzw. Prüfkörper

Die Verschiedenheit der Baumaterialien macht es notwendig, für eine Standardmessmethode zunächst einheitliche Rahmenbedingungen für die Probenvorbereitung bzw. die Herstellung von Prüfkörpern festzulegen. Das betrifft im Besonderen:

- Abmessungen und/ oder Masse des Materials bzw. Prüfkörpers nach dessen ausreichender Klimatisierung;
- Festlegung der Fläche für die eigentliche Exhalationsmessung und Abdichtung der nicht für die Messung vorgesehenen Flächen;
- Auswahl bestimmter physikochemischer Bedingungen bei der Messung (z. B. Wassergehalt, Trocknungsgrad, Oberflächenbeschaffenheit) mit Festlegung entsprechender „Freigabekriterien“;
- Dauer einer ggf. nötigen Wartezeit zwischen Prüfkörperherstellung und Messung bzw. Äquilibrierungszeit zwischen Prüfkörperanlieferung und Messung, Festlegung der Umgebungsbedingungen sowie der Art und Häufigkeit der Kontrollmessungen während der Wartezeit bis zum Erreichen des „Freigabekriteriums“.

2.2 Anforderungen an Prüfkammer und Messgerät

Aus der in der Kammer bestimmten Radonkonzentration wird letztendlich die Radonexhalationsrate berechnet. Je nach Proben- bzw. Messparameter ist diese flächen-

oder massebezogen. Zum Zweck der Vergleichbarkeit sollte das entsprechende Bezugssystem festgelegt werden.

Für Radonmessungen existieren zahlreiche Messverfahren mit entsprechend unterschiedlichen Messgeräten. Die Wahl sollte dem Prüflabor freigestellt werden, sofern die Eignung nachgewiesen ist. Der Nachweis einer gültigen Kalibrierung bei einem anerkannten Prüflabor ist dabei zwingende Voraussetzung. Die untere Nachweisgrenze des eingesetzten Messgerätes muss bekannt sein.

Auch die Details zu der verwendeten Prüfkammer sollten im Bereich definierter Grenzen frei gewählt werden können.

Als Rahmenbedingungen sollten festgelegt werden:

- Abmessungen und Volumen der Messkammer. Dazu soll im Rahmen des Forschungsprojektes untersucht werden, ob eine Korrelation zwischen den gemessenen Radonkonzentrationen und der Prüfkammerbeladung besteht. Das ist in Bezug auf die Wirtschaftlichkeit und den Platzbedarf bei der Durchführung von Routinemessungen für Prüflaboratorien von Bedeutung. Messungen in kleinvolumigen Kammern bieten Vorteile, wenn diese gleichwertig zu Messungen in großvolumigen Kammern sind;
- Kriterien für den Anschluss des Messgeräts an die Messkammer (z. B. Wahl geeigneter Materialien) oder Einbringung des Messgerätes in die Kammer;
- Dichtheitsprüfung der Messkammer und des Anschlusses an das Messgerät;
- Luftströmung über Probenmaterial, evtl. in Anlehnung an übliche Strömungsgeschwindigkeiten in Aufenthaltsräumen;
- Vorgaben an eine ggf. notwendige Radonanreicherung vor der eigentlichen Messung (z. B. Adsorbermaterial, Dauer, Umgebungsbedingungen);
- Länge der Messintervalle, ggf. Benennung einer Mindestlänge für ein Messintervall;
- untere Nachweisgrenze des Messgeräts.

2.3 Anforderungen an die Messung

Für die eigentliche Messung sind unabhängig vom Messverfahren und eingesetztem Messgerät Randbedingungen festzulegen (z. B. Temperatur, relative Luftfeuchtigkeit, Luftdruck, Aerosolkonzentration, Luftaustauschrate).

Ferner muss eine Konvention existieren, wie mit der Radonhintergrundkonzentration umzugehen ist. Im Unterschied zu den VOC ist Radon grundsätzlich in nicht zu vernachlässigender Konzentration in der Raumluft und somit auch in der Prüfkammerluft vorhanden. Je nach Region und Gebäudedichtheit können die Hintergrundkonzentrationen erheblich größer sein als die, die bei der Radonexhalationsmessung eines Bauproduktes evtl. zu erwarten wären.

2.4 Auswahl eines geeigneten Verfahrens

Die Etablierung einer standardisierten Messmethode zur Bestimmung der Radonexhalationsrate ist Bedingung für deren Akzeptanz. Zwar existiert im europäischen Raum bereits eine Prüfnorm [18] (Abschnitt 1.4.5), doch ist sie in Bezug auf die Prüfbedingungen nicht sehr realitätsnah. Um die Expositionshöhe, die auf den Menschen im Innenraum vorherrscht, erfassen zu können, sollten die im Innenraum herrschenden Bedingungen von der Prüfmethode abgebildet werden.

In der Regel stellen Bauprodukte eine flächige Umschließung von Räumen als Wand- oder Deckenbildner bzw. Oberflächenmaterial dar. Daher wird als Standardmessmethode eine flächenbezogene Bestimmung der Exhalationsrate favorisiert. Aufgrund der Verschiedenartigkeit der potenziell zu untersuchenden Baumaterialien (z. B. Festkörper, Schüttgüter, etc.) ist es notwendig, Überlegungen zur Herstellung geeigneter Prüfkörper anzustellen. Dabei muss die spätere Verwendung des Materials im Vordergrund stehen. So wird Schüttgut in der Regel mit anderen Materialien (z. B. andere Baustoffe, Zuschlagstoffe) und Wasser gemischt. Diese bilden dann einen ausgehärteten Feststoff (z. B. Beton). Deshalb müssen gezielt auf die unterschiedlichen Materialien abgestimmte Vorgaben für die Prüfkörperherstellung festgelegt werden. Insbesondere sind hier die Aushärtezeit, die Wasserbildung beim Abbinden und demzufolge die Materialfeuchtigkeit zu berücksichtigen.

Geräte für die eigentliche Radonmessung sind kommerziell erhältlich. Verschiedene Geräte werden im Rahmen der Untersuchungen verwendet. Bei der Auswahl des Detektorsystems ist zu beachten, dass bei niedrig exhalierenden Produkten und der Zuführung von Spülluft die zu messende Radonkonzentration stark abgesenkt wird. Daher sind die Parameter Empfindlichkeit bzw. untere Nachweisgrenze von großer Bedeutung.

Mit der Vorgabe einer flächenbezogenen Exhalationsmessung am Material, wie es in der Realität zur Anwendung kommt, ist für die vorliegende Fragestellung das statische Verfahren der Emanationsmessung mit Szintillationskammer (Abschnitt 1.4.2) ausgeschlossen. Hier wird eine massebezogene Messung an zerkleinertem Probenmaterial durchgeführt, wodurch die Praxisnähe und Probenbezogenheit verloren gehen. Zudem verfolgt dieses Verfahren die Bestimmung der Emanationsrate, aus der schließlich die Exhalationsrate berechnet wird.

Das dynamische Verfahren zur Bestimmung der Emanationsrate mittels der Zweifiltermethode (Abschnitt 1.4.3) erlaubt zwar grundsätzlich eine flächenbezogene Messung, doch handelt es sich letztlich ebenfalls um eine indirekte Messmethode, bei der die Exhalationsrate aus dem bestimmten Wert der Emanationsrate berechnet wird. Es hat jedoch den großen Vorteil, dass sich aufgrund der Anreicherung auf dem Filter sehr niedrige Radonkonzentrationen bestimmen lassen.

Das Halbkugelverfahren mittels elektrischer Abscheidung ermöglicht unmittelbar eine flächenbezogene Messung auf dem Prüfkörper. Die Randbedingungen sind festgelegt und nicht variabel. Nachteilig kann sich das geringe Kammervolumen auswirken, weil Undichtigkeiten zwischen der Halbkugel und der Materialprobe hier stärker die Konzentration beeinflussen als bei größeren Prüfraumvolumina.

Die Radonmessung in VOC-Messkammern bietet die Möglichkeit, flächen- aber auch massenabhängige Messungen in genormten Messkammern unter Realraumbedingungen durchzuführen.

3 Methodischer Teil

3.1 Verwendete Geräte und Materialien

Ziel dieses Vorhabens ist die Entwicklung einer praxisnahen Prüfmethode zur Bestimmung der Radonexhalation aus Bauprodukten. Diese soll in Anlehnung an bereits existierende und etablierte Messmethoden, wie die zur Bestimmung der VOC-Emission aus Bauprodukten, sein. Die Messungen sollen gemäß den Vorgaben der ISO-Normen 16000-9 und 16000-11 [4, 19] erfolgen. Dabei ist konzipiert, Messkammern unterschiedlicher Volumina (Glasexsikkatoren mit 22 L Prüfraumvolumen und eine 1 m³-Messkammer) zu verwenden. Es ist möglich, beide Kammerarten sowohl statisch – also bei einem Luftwechsel n nahe 0 h⁻¹ – als auch dynamisch mit durch bestehende Prüfvorschriften gefordertem Luftwechsel zu betreiben. In beiden Fällen ist eine Homogenisierung durch installierte Rührer bzw. Ventilatoren realisierbar.

Je nach Messanordnung kommen verschiedene Radonmessgeräte zum Einsatz (Abschnitt 3.1.2).

3.1.1 Prüfkammern

3.1.1.1 Glasexsikkatoren

Verwendet werden handelsübliche Exsikkatoren aus Duran[®]-Glas¹ (Abbildung 3.1). Wie bereits einleitend erwähnt, können diese Kleinprüfkammern sowohl statisch als auch dynamisch betrieben werden. Die Luftströmungsgeschwindigkeit wird über einen Propeller eingestellt, der über eine Magnetkupplung mit dem außen liegenden drehzahlgeregelten Motor verbunden ist. Nach umfangreichen Eignungstests sind für die Lagerung der Propellerwelle in der Magnetkupplung kammerseitig spezielle gedichtete Kugellager ausgewählt worden, weil sie nach sorgfältiger Reinigung der Oberflächen keine nachweisbaren Emissionen aufweisen. Das ist im Besonderen nur für die VOC-Emissionsprüfungen von Bedeutung, stellt durch hermetischen Abschluss aber auch sicher, dass an dieser Stelle kein unkontrollierter Luftwechsel mit der Kammerumgebung und damit Radon-Ein- oder Austritt stattfindet.

Die Einstellung des Luftwechsels wird über Nadelventil und Durchflussmesser vorgenommen. Zwischen Ober- und Unterseite befindet sich ein Edelstahlring, der mittels spezieller Vorrichtung weitestgehend luftdicht eingeklemmt wird. In diesem Ring sind insgesamt 12 NPT-Gewinde eingeschnitten, die unter Einsatz geeigneter Verschraubungen Anschlussmöglichkeiten für Luftzu- und -abfuhr, Probenahme, Sensorik (z. B. Temperatur- und Luftfeuchtigkeitsfühler), etc. bieten.

¹ Fa. Schott



Abbildung 3.1: Glasexsikkator mit eingestelltem RADONSCOUT, Kammervolumen $V = 21,9 \text{ L}$

3.1.1.2 1 m^3 -Kammer

Als 1 m^3 -Prüfkammer wurde im Rahmen dieses Vorhabens eine kommerziell erhältliche Klimakammer der Firma WEISS Umwelttechnik eingesetzt (Abbildung 3.2). Sie weist einen Innenprüfraum aus Edelstahl auf. Eine Klimatisierung der Kammer kann über Wärmetauscher und Taupunkt-Befeuchtung erfolgen. Die Kammer lässt sich auf einen Soll-Luftwechsel von 0 h^{-1} einstellen.



Abbildung 3.2: 1 m³-Prüfkammer, hier mit einer Lehmbauplatte beladen

3.1.2 Messgeräte

Für die während des Vorhabens durchgeführten Messungen der Radonexhalation kamen drei unterschiedliche Messgeräte zum Einsatz, die vom Projektpartner Kemski & Partner zur Verfügung gestellt wurden. Alle drei Geräte arbeiten nach dem Prinzip der Alphaspektrometrie von ²¹⁸Po. Man kann sie in Geräte mit aktiver und passiver Probenahme unterscheiden.

3.1.2.1 ATMOS 12 DPX (Fa. Gammadata, Uppsala, Schweden)

Bei diesem Messgerät (Abbildung 3.3) wird die Kammerluft aktiv mit einem Probenahmestrom von 1 L/min über einen Schlauch in eine Pulsationskammer geleitet, in der die Analyse erfolgt. Über einen weiteren Schlauch am Ausgang wird die Luft wieder in die Kammer zurückgeführt. Vorteil ist, dass die Probenahme der Kammerluft im Bypass durchgeführt wird. Somit sollte kein zusätzlicher Austausch mit der Umgebungsluft erfolgen. Unter Einhaltung einer ausreichend großen Frist zum Spülen der Schläuche könnten so mehrere Prüfkammern abwechselnd geprüft werden.



Abbildung 3.3: ATMOS 12 DPX

Zudem bietet das ATMOS 12 DPX die Möglichkeit, über ein außen am Gerät angebrachtes Display die aktuell gemessene Radonkonzentration ablesen zu können. Weil es nicht in die Messkammern eingestellt werden muss, sondern außen angeschlossen wird, kann die Datenauslesung jederzeit durchgeführt werden. Das macht es grundsätzlich für Messungen an allen Kammertypen im Parallelbetrieb einsetzbar.

3.1.2.2 RADIM 3 A (Fa. Jiří Pich M. Eng. SMM, Prag, Tschechische Republik)

Bei diesem Gerät (Abbildung 3.4) diffundiert ^{222}Rn in die Messzelle und zerfällt. Das Zerfallsprodukt ^{218}Po wird elektrostatisch abgeschieden und die Konzentration auf einem Halbleiterdetektor alphaspektrometrisch vermessen. Das RADIM 3 A wird häufig für Langzeituntersuchungen in Innenräumen eingesetzt, wobei es während der Messung am selben Ort stehen bleiben muss. Bei den Kammerversuchen hat sich dieser Umstand als nachteilig erwiesen. Das Gerät muss während der gesamten Messung in der Prüfkammer verbleiben. Das bedeutet einerseits, dass keine parallelen Probenahmen wie mit dem ATMOS 12 DPX durchgeführt werden können, andererseits muss für die Auslesung ein Datenanschluss nach außen gelegt werden. An der Austrittsstelle der Datenleitung an der Kammer müssen daher geeignete Abdichtungsmaßnahmen getroffen werden.

Aufgrund seiner Abmaße (230 x 170 x 90 mm) erwies sich das RADIM 3 A nur für die 1 m³-Kammer als geeignet. Es war nicht möglich, eine der Proben zusammen mit dem Gerät in einen Exsikkator zu stellen, ohne dabei die Funktionalität des Rührers zu beeinträchtigen. Dies war nur möglich, wenn die Proben geteilt wurden. Dadurch wurde aber der ursprüngliche Zustand der Proben verändert, was zu einer nur bedingten Vergleichbarkeit der Prüfergebnisse führt.



Abbildung 3.4: RADIM 3 A

3.1.2.3 RADONSCOUT (Fa. Sarad, Dresden)

Der RADONSCOUT (Abbildung 3.5) hat mit seinen Abmaßen (175 x 135 x 55 mm) nur ca. ein Drittel des Volumens des RADIM 3 A, so dass es zusammen mit den Proben in einen Glasexsikkator und problemlos in größere Kammern gestellt werden kann. Die Datenübertragung erfolgt, wie beim RADIM 3 A, über eine gesonderte Datenleitung aus der Prüfkammer heraus. Das Analysenprinzip ist das gleiche wie beim tschechischen Gerät.



Abbildung 3.5: RADONSCOUT

3.1.3 Einschränkungen bei der externen Messung mit dem ATMOS 12 DPX

Als Messszenario mit dem ATMOS 12 DPX war die parallele Messung von mehreren Prüfkammern geplant. Dabei sollten gleichzeitig mehrere Kammern, z. B. Kleinprüfkammern, mit Radon exhaliierenden Prüfstücken beladen werden. Wegen der geringen aus Vorversuchen erwarteten Konzentrationen mussten die Kammern statisch, das heißt quasi mit Luftwechsel $n = 0 \text{ h}^{-1}$ betrieben werden. Nach einer festgelegten Zeit war die Maximalkonzentration im Bypass-Betrieb zu messen und danach die Schläuche wieder zu entfernen. Damit die Schläuche und die Messzelle für die nächste Messung wieder gesäubert sind, waren sie mit sauberer Luft zu spülen (z. B. mit gealterter synthetischer Luft aus der Druckgasflasche oder aufbereiteter radonarmer Reinstluft).

Diese Vorgehensweise wurde im Rahmen der Eignungsüberprüfung von Materialien zur Flächenversiegelung (Abschnitt 3.5) angewandt. Dabei war bei manchen Messungen anstatt eines Anstiegs bzw. der Konstanz der Konzentration eine Abnahme festzustellen. Der Ausschnitt aus einer kontinuierlichen Radonmessung mit dem ATMOS 12 DPX ist in Abbildung 3.6 dargestellt.

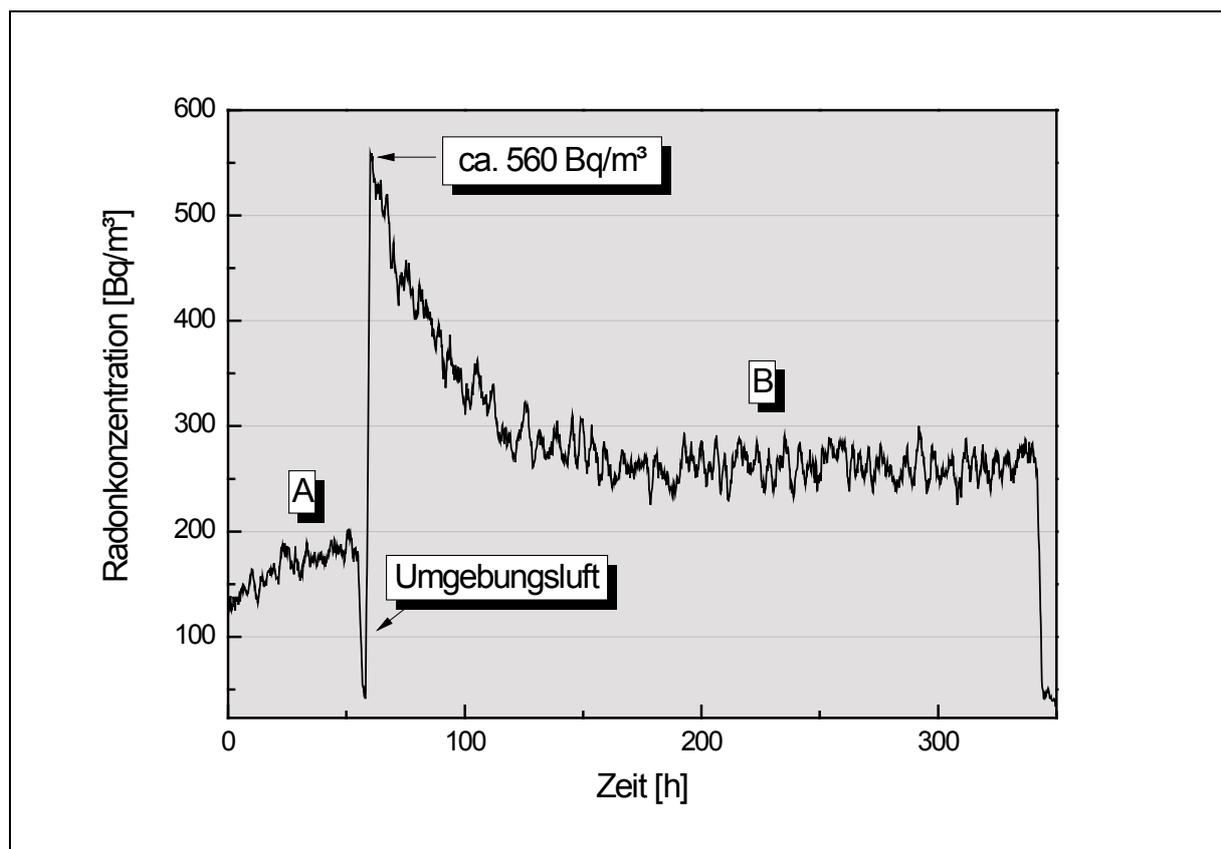


Abbildung 3.6: Kontinuierliche Konzentrationsmessung mit dem ATMOS 12 DPX, Kammern statisch mit Soll-Luftwechsel $n = 0 \text{ h}^{-1}$ (Kammer A: Radon-„dicht“ verpackter Lehmstein, Kammer B: nicht verpackter gleicher Lehmstein)

Bei der mit A gekennzeichneten Kurve handelt es sich um den Konzentrationsanstieg eines Lehmsteins, der komplett mit einer als radondicht angenommenen Folie umwi-

ckelt wurde. Bei Radondichtheit hätte an dieser Stelle bestenfalls die Radonhintergrundkonzentration ermittelt werden dürfen. Dieser Stein befand sich erst zwei Tage in der Kammer. Daher wurde die Maximalkonzentration noch nicht erreicht, woraus der dargestellte Anstieg resultierte. Dann wurden die Schläuche von dieser Kammer entfernt, und es folgte die Spülung mit Umgebungsluft, was den starken Konzentrationsabfall verursachte.

Im Anschluss an diese Spülphase wurden die Schläuche des ATMOS 12 DPX an eine weitere Prüfkammer angeschlossen, die mit einem gleichen, aber unverpackten Lehmstein bereits seit mehr als drei Monaten beladen war. Der Wert der Maximalkonzentration sollte gemessen werden (Kurve B). Doch anstelle eines konstanten Konzentrationsverlaufs war zunächst eine drastische Abnahme der Radonkonzentration festzustellen, worauf schließlich nach ca. fünf Tagen die Radonkonzentration nahezu konstant blieb. Wenn davon auszugehen ist, dass es sich bei dem ersten gemessenen Wert von ca. 560 Bq/m^3 um die Maximalkonzentration handelt, die vor dem Anschluss des ATMOS 12 DPX herrschte, erfolgte nach dessen Anschluss eine Konzentrationsabnahme auf ca. 270 Bq/m^3 , was einer Reduktion von etwas mehr als 50 % entspricht².

Nach Feststellung dieses Phänomens traten erste Zweifel an der Dichtheit des Messsystems auf. Es wurde vermutet, dass durch das ATMOS 12 DPX Umgebungsluft in die Messkammer gespült wird, die zu einer Verdünnung führte. Um diese These zu verifizieren, wurde die vermutlich vorhandene Luftwechselrate des ATMOS 12 DPX bestimmt. Das Vorgehen ist im Abschnitt 3.3.2.1 beschrieben. Als Tracer gas diente Distickstoffoxid (N_2O), als Messgerät wird der UNOR 6 N³ verwendet.

Die Bestimmung des Luftwechsels erfolgte in zwei Schritten:

1. Anschluss des UNOR 6 N an die 22 L -Kammer.

Die Messung erfolgte im Bypass. Bei dieser Messanordnung wurde eine natürliche Luftaustauschrate von $n = 0,0056 \text{ h}^{-1} = 0,135 \text{ d}^{-1}$ festgestellt. Das entspricht einem Luftaustausch von etwa 3 L pro Tag. Ein geringer Anteil von etwa 0,3 L ist dabei dem Messgerät UNOR 6 N zuzuschreiben. Ursprünglich wurde davon ausgegangen, dass ein n von 0 h^{-1} vorliegt, da die 22 L -Kammern statisch, also ohne Zuluft betrieben wurden und geschlossen waren.

2. Anschluss des UNOR 6 N und des ATMOS 12 DPX (Messanordnung am Exsikkator um ATMOS 12 DPX erweitert – beide Geräte im Bypass).

Der gemessene Luftwechsel stieg auf den Wert $n = 0,0276 \text{ h}^{-1} = 0,661 \text{ d}^{-1}$, was einem Luftaustausch von rund 14,5 L pro Tag entspricht. Damit reduziert sich die durchschnittliche Aufenthaltsdauer der Prüfraumlufte von mehr als einer Woche (natürlicher Luftwechsel) auf weniger als zwei Tage. Es liegen damit massive Eingriffe auf die Einstellung des Radongleichgewichts vor, was eine ausreichende Berücksichtigung dieser Prozesse erfordert.

² Im weiteren Verlauf der Arbeit sollte sich herausstellen, dass die Radonkonzentration des Lehmsteins im Gleichgewicht ($n = 0 \text{ h}^{-1}$) bei ca. 700 Bq/m^3 liegt.

³ Fa. Maihak, Hamburg

Den Messdaten ist zu entnehmen, dass mit Anschluss des ATMOS 12 DPX der Luftwechsel etwa auf das Fünffache gestiegen ist gegenüber dem Luftwechsel ohne ATMOS 12 DPX. Es muss daher davon ausgegangen werden, dass die Ursache für die nicht erwarteten Messergebnisse in dem Gerät zu sehen ist, indem es einen Zusatzbeitrag zum Luftwechsel verursacht hat.

Das heißt aber auch, dass bei Nullpunktmessungen (Reinstluft; leere, abgeklungene Kammer) Umgebungsluft in die Messanordnung über das ATMOS 12 DPX eingetragen wird und die Bestimmung des Nullniveaus mit dieser Messanordnung nur bedingt möglich ist. Eine korrekte Bestimmung wäre demnach nur zu erreichen, wenn sich das ATMOS 12 DPX innerhalb der Prüfkammer befände. Weiterhin denkbar wäre ein doppelt umschließendes Messsystem, welches aber das Messverfahren sehr komplex gestalten würde und kaum tauglich für die Praxis wäre.

An dieser Stelle sei betont, dass eine absolute Dichtheit des Messgerätes bzw. der verwendeten Pumpen prinzipiell schwer zu realisieren ist. Das gilt generell für Geräte dieser Bauart und ist nicht auf den Hersteller des hier verwendeten Geräts beschränkt.

Aufgrund dessen wurde für die im Abschnitt 3.4 beschriebenen Versuche auf die passiven Messgeräte (RADIM 3 A und RA DONSCOUT) zurückgegriffen. Parallelmessungen konnten nicht mehr durchgeführt werden, da die Geräte in den Prüfkammern über die gesamte Versuchszeit verbleiben mussten.

Aus den hier beschriebenen Ergebnissen kann aber noch eine weitere Schlussfolgerung gezogen werden. Offensichtlich ist es kaum möglich, absolut dichte Messsysteme zu bauen, so dass die Annahme einer Luftwechselrate von Null nicht zutrifft. Dieser Sachverhalt wurde zum Anlass genommen, der Luftwechselproblematik größere Beachtung zu schenken (Abschnitt 3.3.2).

3.1.4 Materialien

In dem Forschungsvorhaben sollte nicht eine möglichst breite Palette von Baumaterialien bezüglich ihrer Radonexhalation untersucht werden, sondern mit gezielt ausgewählten Proben eine geeignete Vorgehensweise für die Konditionierung und anschließende Messung des Materials entwickelt werden.

Die konkrete Auswahl der Untersuchungsmaterialien erfolgte in Absprache mit dem DIBt und berücksichtigte die Ergebnisse des DIBt-Forschungsvorhabens zur Radioaktivität in Baustoffen [1]. Diese damaligen Untersuchungen ergaben, dass die Exhalationsrate der Wandbildner fast ausnahmslos deutlich unter $1 \text{ Bq/m}^2 \text{ h}$ lag, lediglich einige Leichtbetone wiesen Werte zwischen $0,5$ und $1 \text{ Bq/m}^2 \text{ h}$ auf. Die daraus ableitbaren Radonkonzentrationen in der Raumluft eines Modellraumes ergeben sehr geringe Werte unterhalb von 5 Bq/m^3 .

Für die Radonexhalationsmessungen sollten gemäß den Vorgaben des im o. g. Vorhaben entwickelten Bewertungsschemas sowohl Wandbildner als auch Materialien für den Oberflächeneinsatz mit jeweils hoher und niedriger (erwarteter) Radonexhalationsrate untersucht werden. Als Vertreter der Wandbildner wurden Produkte aus der Gruppe der Leichtbetone und Ziegel gewählt, stellvertretend für Oberflächenma-

Materialien Lehmstein und Lehmbauplatte. Im Einzelnen wurden der BAM folgende Materialien vom Projektpartner Kemski & Partner zur Verfügung gestellt:

Tabelle 3.1: Zu Messzwecken verwendete Materialien

Anzahl	Material	Abmaße [cm]	Durchschnittliche Gesamtoberfläche pro Stück [m ²]	Durchschnittliche Masse [kg]
5	Lehmstein, Stroh	24 x 11,5 x 7,1	0,1056	1,308
5	Lehmstein	24 x 11,5 x 7,1	0,1056	2,250
6	Kompaktziegel	24 x 11,5 x 7,1	0,1056	4,355
18	Leichtbeton	24 x 11,5 x 7,1	0,1056	2,332
18	Hochlochziegel	24 x 11,5 x 11,3	0,1354 ⁴	2,619
1	Lehmbauplatte	65 x 62 x 2	0,857	13,984

Die Probenmaterialien wurden nach Anlieferung zur Konditionierung in einem klimatisierten Raum eingelagert (Temperatur: 23 °C, relative Luftfeuchtigkeit: 50 %). Dies geschah, da die Proben im Februar 2010 in kaltem und teils nassem Zustand angeliefert wurden, was zur Folge hatte, dass die Proben nach einigen Tagen noch nicht ausreichend klimatisiert waren. Bei ersten Orientierungsmessungen wurde deshalb in der 1 m³-Messkammer ein Anstieg der relativen Luftfeuchtigkeit auf bis zu 80 % festgestellt (Messung mit RADIM 3 A). Daraufhin wurde der Beginn der eigentlichen Radonexhalationsmessungen auf einen späteren Zeitpunkt verschoben, um eine ausreichende Klimatisierung der Proben zu gewährleisten.

Acht Wochen später konnte trotz Klimatisierung immer noch ein Anstieg der relativen Luftfeuchtigkeit auf ca. 70 % beobachtet werden. Mithin ist festzustellen, dass die Konditionierung der Proben verhältnismäßig lang dauern kann und deshalb der Überwachung bedarf ehe mit den Radonexhalationsmessungen begonnen wird.

Die Messreihen, die in diesem Bericht beschrieben werden, begannen ab August 2010. Zu diesem Zeitpunkt konnte während der Messungen eine stabile relative Luftfeuchtigkeit von durchschnittlich 50 % verzeichnet werden.

Für die Abdichtungsmaßnahmen zur Durchführung von Messungen mit definierter Exhalationsoberfläche standen zur Verfügung:

- Aluminiumfolie (0,04 mm stark)
- Aluminiumkaschierte Kunststoffolie (PET/PE)
- Hochelastische, lösemittelfreie und folienartig auf trocknende Kautschuk-Bitumen-Beschichtung (Flüssigfolie)

⁴ Auf äußere Abmaße bezogen, aufgrund der integrierten Hohlräume ist die tatsächliche Oberfläche größer.

- Kaltselfklebende Bitumenbahn mit HDPE-Trägerfolie
- Klebepaste
- Kaltselfklebendes Klebeband

Alle Materialien sollten aufgrund ihrer Beschaffenheit zur Abdichtung gegenüber Radon geeignet sein. Die kaltselfklebende Bitumenbahn ist laut Hersteller als radondicht zertifiziert.

3.2 Untersuchungen zur Geochemie und Radonexhalation

Vor den eigentlichen VOC-Prüfkammermessungen wurden die spezifischen Radionuklidaktivitäten der Untersuchungsmaterialien sowie die Höhe der Radonexhalation mittels zweier unterschiedlicher Verfahren ermittelt.

Vom Radionuklidinventar der Proben interessiert vorrangig die spezifische Ra-226-Aktivität. Daraus lässt sich einerseits eine maximal mögliche Radonexhalationsrate ableiten, andererseits wird sie als eine von mehreren Kenngrößen für die Umrechnung einer massebezogenen in eine flächenbezogene Exhalationsrate benötigt. Die Bestimmung der Radonexhalation gibt Auskunft über die Höhe des zu erwartenden Radonsignals bei den Prüfkammermessungen.

3.2.1 Messung der spezifischen Radionuklidaktivitäten

Die Messungen der spezifischen Radionuklidaktivitäten erfolgten mittels Gammastrahlenspektrometrie und wurden vom Projektpartner Kemski & Partner durchgeführt.

Die Proben wurden bei 110 °C getrocknet und auf Korngrößen von maximal 0,5 cm zerkleinert. Jeweils 50 g des Probenmaterials wurden in zylindrische Polyethylen Dosen abgefüllt, mit kaschierter Al-Folie gasdicht verschlossen, um ein Entweichen des Radons aus der Dose zu verhindern, und eindeutig beschriftet.

Für die Messung wurde ein System der Firma CANBERRA eingesetzt, bestehend aus einem koaxialen Reinstgermanium-Detektor (Typ 7229 P), der zusammen mit dem angebauten FET-Vorverstärker (Typ 2001) auf einem 30 L Dewargefäß in eine Bleiburg von 10 cm Wandstärke eingebaut ist, einem extern angeordneten Präzisionshauptverstärker (CI 202 0) und einer Vielkanalkarte im PC. Zeitkonstante und Verstärkung des Hauptverstärkers sind so eingestellt, dass den Impulshöhen von 0 bis 10 V ein Energiebereich von 25 bis 3.100 keV entspricht. Die Detektorhochspannung von 4,5 kV liefert ein Netzgerät mit stabilisiertem Hochspannungsteil (DS 7018 mit CM 3106 B Einschub). Der Detektor hat eine relative Ausbeute von 30 % (bezogen auf einen 3 Kubikzoll NaJ(Tl)-Detektor in 25 cm Entfernung); seine Auflösung bei 1,33 MeV erreicht 1,8 keV (volle Halbwertsbreite) bzw. 3,4 keV (Zehntelwertsbreite) und das Peak/Compton-Verhältnis beträgt 60 : 1.

Die aufbereiteten und verschlossenen Proben wurden nach einer Wartezeit von mindestens sechs Wochen gemessen. Dies entspricht ca. 10 Halbwertszeiten von Rn-222, innerhalb der sich das radioaktive Gleichgewicht zwischen Ra-226 und Radon und seinen Folgeprodukten eingestellt hat. Die Messzeit pro Probe betrug jeweils

24 Stunden. Wegen dieser langen Messzeit werden von den Probenspektren Untergrundspektren der leeren Bleikammer abgezogen.

Die Ra-226-Aktivität wurde unter Annahme des radioaktiven Gleichgewichtes aus seinen Folgeprodukten Pb-214 und Bi-214 bestimmt. Tabelle 3.2 stellt die Messwerte dar, jeweils ergänzt um die Aktivitäten von Th-232 (bestimmt über Ac-228, Pb-212 und Tl-208) und K-40. Der Leichtbeton und die beiden Ziegel weisen durchschnittliche Ra-226-Aktivitäten auf, die Lehmmaterialien zeigen eher unterdurchschnittliche Werte.

Tabelle 3.2: Radionuklidaktivitäten von Ra-226, Th-232 und K-40 in den verwendeten Baumaterialien und berechneter Indexwert nach RP-112

Material	Radionuklidaktivitäten [Bq/kg]			RP 112 Index
	Ra-226	Th-232	K-40	
Leichtbeton	52	66	688	0,7
Hochlochziegel	33	37	479	0,5
Kompaktziegel	42	58	843	0,7
Lehmstein	25	30	468	0,4
Lehmstein, Stroh	21	29	334	0,3
Lehmbauplatte	17	21	373	0,3

Der berechnete Indexwert lässt vermuten, dass bei Einsatz der verwendeten Materialien die Dosis von 1 mSv/a nicht überschritten werden sollte (Abschnitt 1.2). Die Lehmmaterialien unterschreiten sogar die Dosis von 0,3 mSv/a. Diese ist in der RP 112 als Ausschlusslevel definiert. Solche Materialien würden dann von einer weiteren Untersuchung ausgeschlossen (vgl. auch Abschnitt 4.3.1).

3.2.2 Messung der Radonexhalation

Mittels zweier unterschiedlicher Verfahren wurde die Radonexhalation aller Proben bestimmt. Die so gewonnenen Messwerte können als „Vergleichswert“ zur Bewertung der Prüfkammernmessungen herangezogen werden.

3.2.2.1 Messung der Radonexhalation durch Kemski & Partner

Es gibt in Deutschland kein genormtes oder standardisiertes Verfahren zur Prüfung der Radonexhalationsrate. Wie in Abschnitt 1.4 beschrieben, kommen unterschiedliche Methoden zur flächen- oder massebezogenen Messung zum Einsatz, in der Regel auch mit einer unterschiedlichen Art der Probenvorbereitung bzw. -konfektionierung (z. B.: Masse, Trocknung, Abmessungen, Abdichtung).

Um für die VOC-Prüfkammerversuche im vorliegenden Vorhaben einen Eindruck über die Höhe des aus den Proben exhalieren Radons zu erhalten, wurden mittels einer einfachen Versuchsanordnung vom Forschungsnehmer Kemski & Partner entsprechende Messungen durchgeführt. Alle sechs Probenmaterialien wurden untersucht.

Hierzu wurden der Probenkörper und ein Radonmessgerät (Radim 3 A oder Radon-Scout) in eine 50 L fassende Messkammer eingebracht und die Kammer anschließend luftdicht verschlossen. Die Proben wurden in der Kammer auf kleinen Haltern

positioniert, so dass die nicht für eine Exhalation zur Verfügung stehenden Bereiche so klein wie möglich gehalten wurden. Dadurch stand nahezu die gesamte Probenoberfläche in unmittelbarem Kontakt zur umgebenden Luft mit der Möglichkeit einer ungehinderten Exhalation. Der Anstieg der Radonkonzentration in der Kammer wurde in 1 h-Intervallen aufgezeichnet. Die Messzeit betrug jeweils mindestens 300.000 Sekunden (= ca. 7 Tage). Die Höhe der Gleichgewichtskonzentration in der Messkammer wurde aus dem zeitlichen Verlauf des Anstieges durch eine nichtlineare Regression laut nachfolgender Formel berechnet:

$$c_{Rn}(t) = c_{Rn,0} \cdot e^{-\lambda_{Rn} \cdot t} + c_{Rn,GW} \cdot (1 - e^{-\lambda_{Rn} \cdot t}) \quad (3.1)$$

mit

$c_{Rn}(t)$	gemessene Radonkonzentration zum Zeitpunkt t in Bq/m ³
$c_{Rn,0}$	Radonanfangskonzentration in der Messkammer in Bq/m ³
$c_{Rn,GW}$	Radonkonzentration bei Erreichen des Gleichgewichtes in Bq/m ³
λ_{Rn}	Zerfallskonstante des Radons ($\lambda_{Rn} = 0,00755 \text{ h}^{-1}$)

Die graphische Darstellung des jeweiligen Anstiegs der Radonkonzentration ist der Abbildung 3.7 zu entnehmen.

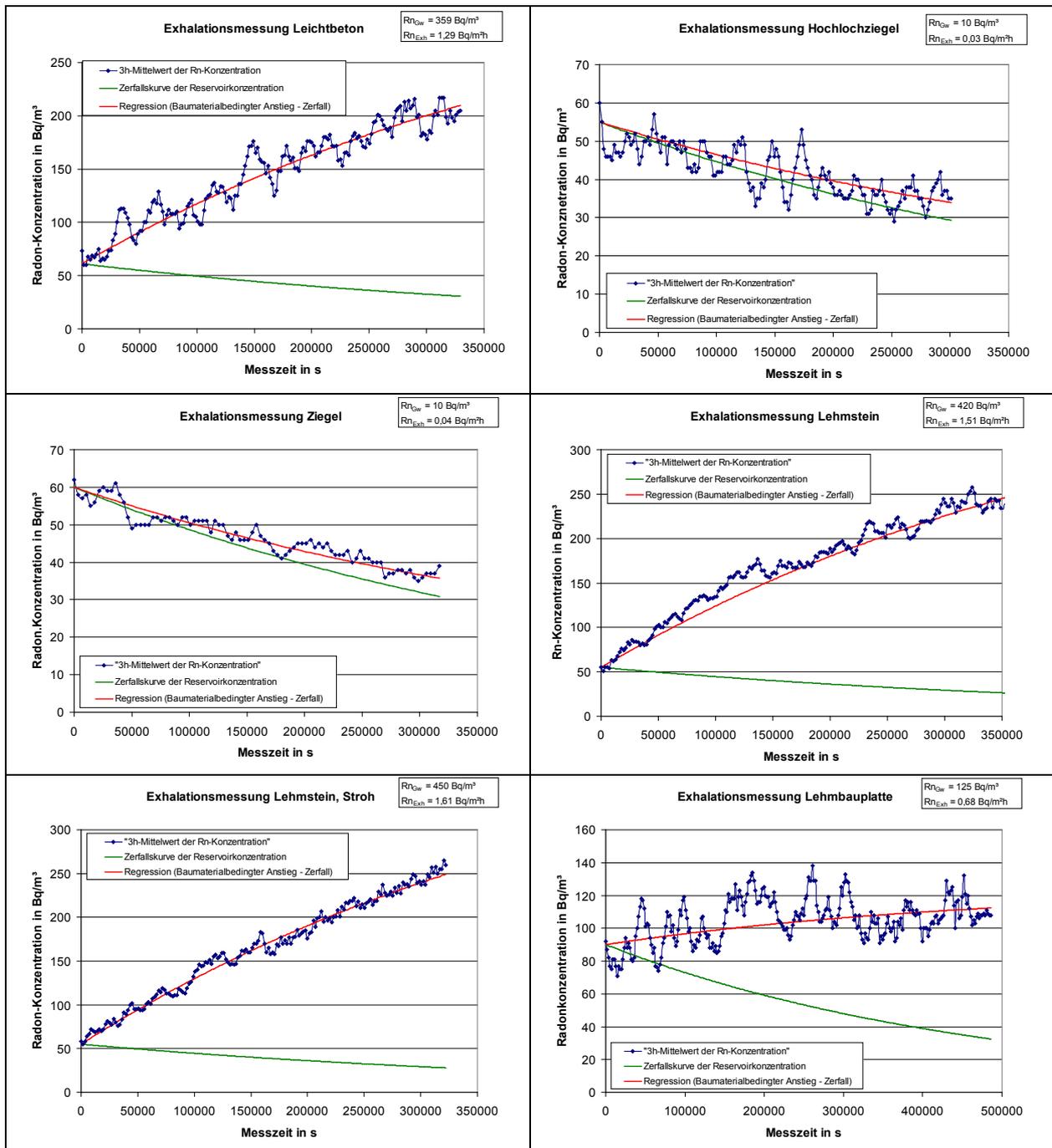


Abbildung 3.7: Anstiege der Radonkonzentration der verwendeten Baumaterialien (Messungen K & P)

Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 3.3 aufgelistet.

Tabelle 3.3: Ergebnisse der Bestimmung der Radonexhalationsrate nach der Methode von Kemski & Partner

Material	Ra-226 [Bq/kg]	Oberfläche [m ²]	Gl.gew.-Konz. Rn [Bq/m ³]	Exh.-Rate [Bq/m ² h]
Leichtbeton	52	0,1049	359	1,29
Hochlochziegel	33	0,1298	10	0,03
Kompaktziegel	42	0,1049	10	0,04
Lehmstein	25	0,1049	420	1,51
Lehmstein, Stroh	21	0,1049	450	1,61
Lehmbauplatte	17	0,0694	125	0,68

Gemäß Gleichung 3.2

$$ER_A = c_{Rn,GW} \cdot (1 - e^{-\lambda_{Rn} \cdot t}) \cdot \frac{V_{Kammer}}{t \cdot A_{Material}} \quad (3.2)$$

mit

ER_A	Exhalationsrate der Probe in Bq/m ² h
$c_{Rn,GW}$	Radonkonzentration bei Erreichen des Gleichgewichtes in Bq/m ³
λ_{Rn}	Zerfallskonstante des Radons ($\lambda = 0,00755 \text{ h}^{-1}$)
V_{Kammer}	Volumen der Messkammer in m ³
t	Messzeit ($t = 1 \text{ h}$)
$A_{Material}$	Oberfläche der Probe in m ²

wurde die flächenbezogene Exhalationsrate berechnet.

Die Berechnung der jeweiligen Oberfläche erfolgte ausschließlich auf Basis von Länge, Breite und Höhe des Probekörpers ohne Berücksichtigung möglicher innerer Oberflächen (z. B.: Porenräume bei Leichtbeton, Hohlräume beim Hochlochziegel, Weggamkeiten entlang der Strohpartikel).

Die Exhalationsraten der gesamten Oberflächen variieren zwischen 0,03 und 1,61 Bq/m² h. Die niedrigsten Raten wiesen die Ziegel, die höheren Exhalationsraten der Leichtbeton sowie die Lehmsteine auf.

Eine Abhängigkeit zwischen Exhalationsrate und spezifischer Ra-226-Aktivität existiert nicht (Abbildung 3.8). Dies ist auch plausibel, weil gammaspektrometrisch das Radionuklidinventar pauschal betrachtet wird, für die Exhalation aber die Größe der zur Radonabgabe verfügbaren Materialoberfläche sowie die räumliche Position der Radiumatome innerhalb der Mineralkörner eine entscheidende Rolle spielen. Diese Größen sind allerdings voneinander unabhängig. Insofern kann aus dem Radionuklidinventar auch nicht auf die Radonexhalation geschlossen werden.

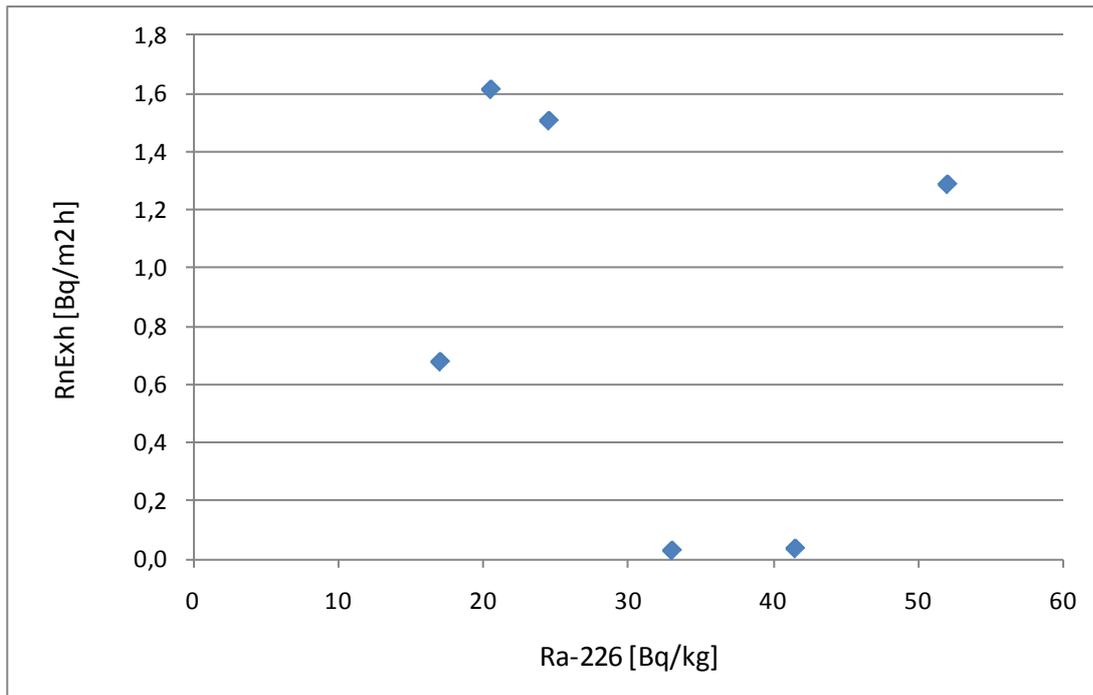


Abbildung 3.8: Auftragung der Radonexhalationsrate gegen Ra-226-Aktivität (Kemski & Partner)

3.2.2.2 Messung der Radonexhalation durch BfS

Die massenbezogene Bestimmung der Radonexhalationsrate wurde vom BfS nach dessen Standardmethode durchgeführt [20] und auch bereits bei [1] beschrieben. Das eingesetzte Verfahren beruht auf der Messung der Radonemanation. Hierbei wird die Radonsättigungskonzentration einer einheitlich vorbehandelten (Mahlung und Trocknung) Pulverprobe bestimmt, die sich nach einer Wartezeit von mehr als 12 Tagen in einem gasdicht abgeschlossenen Probengefäß aufgebaut hat. Aus diesem Gefäß wird ein Teilvolumen in eine vorevakuierte Szintillationskammer eingeleitet, die Rn-222-Aktivitätskonzentration gemessen und unter Zuhilfenahme der spezifischen Ra-226-Aktivität, des Diffusionskoeffizienten und der Dichte des Materials der Radonemanationskoeffizient berechnet. Für den Diffusionskoeffizienten wurde ein konservativer Wert von $1 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ angenommen. Die relative Unsicherheit des Diffusionskoeffizienten beträgt 30 %; die des Emanationskoeffizienten hat den Faktor 2. Bedingt durch den Messaufbau wird hierbei ein *worst case*-Szenario bewertet.

Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 3.4 zusammengestellt. Die Berechnung der flächenbezogenen Exhalationsrate stellt eine Näherung für große Diffusionslängen mit einer Exhalation nach beiden Seiten dar und erfolgte nach Gleichung 3.3:

$$ER_A = \rho_{\text{Material}} \cdot \varepsilon \cdot A_{\text{Ra-226}} \cdot \lambda_{\text{Rn}} \cdot \frac{d}{2} \quad (3.3)$$

mit

ER_A	flächenbezogene Exhalationsrate in $\text{Bq}/\text{m}^2 \text{ h}$
ρ_{Material}	Rohdichte des zu prüfenden Baumaterials in kg/m^3
ε	Emanationskoeffizient (dimensionslos)
$A_{\text{Ra-226}}$	Aktivität von Radium-226 in Bq/kg

λ_{Rn} Zerfallskonstante von Radon-222 in h^{-1}
 d Einbaudicke in m

Tabelle 3.4: Berechnung der flächenbezogenen Exhalationsrate ER_A aus gemessenen spezifischen Materialparametern

Material	Aktivität A_{Ra-226} [Bq/kg]	Eman.koeff. ε	Einbaudicke d [m]	Dichte $\rho_{Material}$ [kg/m ³]	Exhalationsrate ER_A [Bq/m ² h]
Leichtbeton	52	0,050	0,11	675	0,73
Hochlochziegel	33	0,006	0,11	865	0,07
Kompaktziegel	42	0,003	0,11	2239	0,13
Lehmstein	25	0,210	0,11	1179	2,57
Lehmstein, Stroh	21	0,480	0,11	675	2,83
Lehmbauplatte	17	0,170	0,03	1678	0,55

3.2.2.3 Vergleich der Radonexhalationsmessungen und Diskussion

Die Ergebnisse der Exhalationsmessungen des Forschungsnehmers Kemski & Partner und des BfS sind in Tabelle 3.5 zusammengestellt. Abbildung 3.9 stellt die Gegenüberstellung der jeweils erzielten Messergebnisse dar.

Tabelle 3.5: Gegenüberstellung der Exhalationsmessungen nach den Methoden von Kemski & Partner und des BfS

Material	ER_A (Kemski & Partner) [Bq/m ² h]	ER_A (BfS) [Bq/m ² h]
Leichtbeton	1,29	0,73
Hochlochziegel	0,03	0,07
Kompaktziegel	0,04	0,13
Lehmstein	1,51	2,57
Lehmstein, Stroh	1,61	2,83
Lehmbauplatte	0,68	0,55

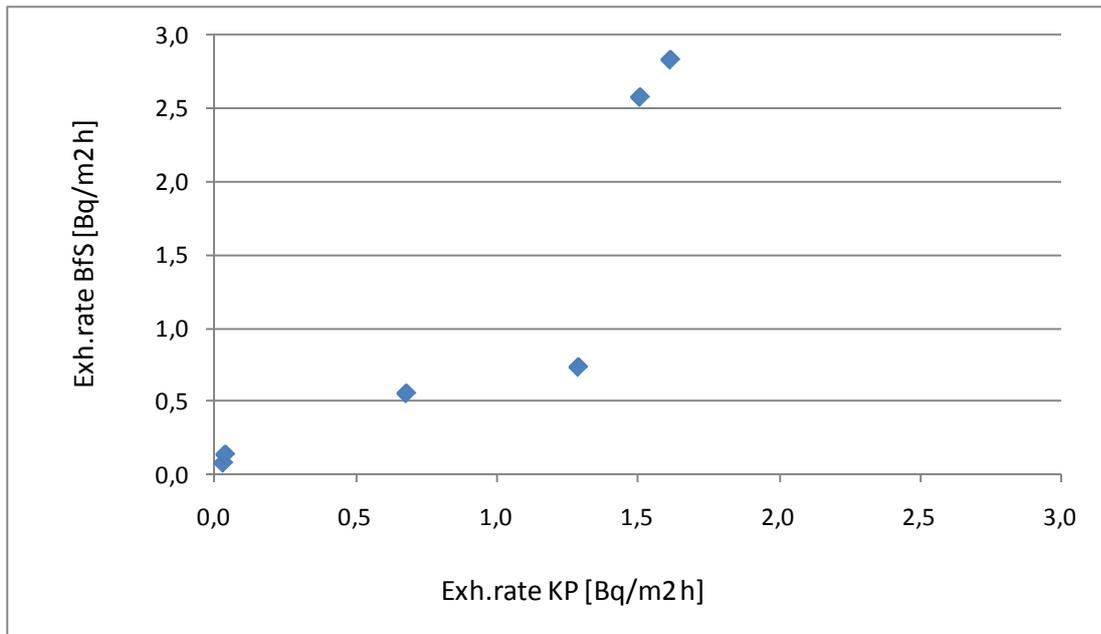


Abbildung 3.9: Vergleich der Radonexhalationsraten von Kemski & Partner gegen die des BfS

Die Bestimmung der Exhalationsrate erfolgte auf unterschiedlichem Weg und führte auch zu teilweise differierenden Werten.

Bei der Gegenüberstellung der Exhalationsraten lässt sich keine eindeutige Korrelation zwischen beiden Messreihen erkennen, wenngleich ein Trend festzustellen ist. Die Abweichungen sind zunächst nicht ohne Weiteres erklärbar. Auch hier bieten sich allerdings Unterschiede in der Dichte der Materialien, der Größe der inneren Oberflächen und der Position der Radiumatome im Mineralkorn als Interpretationsmöglichkeit an. Ein zusätzlicher Effekt dürfte durch das Aufmahlen der Proben auf feine Korngrößendurchmesser entstehen, wie es bei der BfS-Methode stattfindet.

Die geringe Anzahl der untersuchten Proben lässt jedoch keine detaillierten und belastbaren Schlussfolgerungen zur Ursache der Unterschiede zu. Hierzu wären ggf. weitere gezielte Untersuchungen notwendig, insbesondere, wenn die BfS-Methode routinemäßig eingesetzt werden soll.

3.3 Untersuchungen zur Vorbereitung der Exhalationsmessungen in den VOC-Prüfkammern

Die Norm ISO 16000-9 legt folgende Prüfbedingungen für die Bestimmung der Emission von flüchtigen organischen Verbindungen (VOC) aus Bauprodukten und Einrichtungsgegenständen fest.

Temperatur:	23 °C ± 2 K
Rel. Luftfeuchtigkeit:	50 % ± 5 %
Anströmgeschwindigkeit:	0,1 m/s bis 0,3 m/s
Luftwechselrate	0,5 h ⁻¹

Ferner wird für Messkammern $\leq 20 \text{ m}^3$ festgeschrieben, dass die TVOC-Hintergrundbelastung (Total Volatile Organic Compound), also die Summe sämtlicher VOC nicht größer als $20 \text{ } \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen darf. Dabei darf die Massenkonzentration eines einzelnen gemessenen VOC maximal $2 \text{ } \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen. Die Einhaltung der Vorgaben muss vor Durchführung der Prüfkammermessungen überprüft werden.

Es ist beabsichtigt, sich für die Durchführung der Radonexhalationsmessungen an den in dieser Norm festgelegten Randbedingungen zu orientieren. Folglich ist zu überlegen, ob es sinnvoll erscheint, ähnliche Kriterien auch für die Radonhintergrundkonzentration festzuschreiben.

3.3.1 Messung der Radonhintergrundkonzentration in den Prüfkammern

Im Unterschied zu den VOC kann die natürliche Radonhintergrundkonzentration erheblichen Einfluss auf das Messergebnis haben, wobei es schwierig ist, die Hintergrundkonzentration aus den Berechnungen zu eliminieren. Je nach Region und Zustand eines Gebäudes können typischerweise Konzentrationswerte zwischen 10 und $140 \text{ Bq}/\text{m}^3$ gemessen werden [6]. Diese Hintergrundkonzentration als Blindwert sollte von einem Messwert nicht pauschal abgezogen werden, weil sich ihr Wert während der Exhalationsmessung gemäß den Gesetzmäßigkeiten für den radioaktiven Zerfall bei vollständiger Kammerdichtheit vermindert (Gleichung 3.4). Diese natürliche Verminderung muss bei der Angabe der Radonkonzentration berücksichtigt werden. Inwieweit dieser Verminderungseffekt Berücksichtigung finden kann, hängt jedoch vom bestehenden natürlichen Luftwechsel ab.

$$N_{Rn} = N_{Rn,0} \cdot e^{-\lambda_{Rn}t} \quad (3.4)$$

mit

N_{Rn}	Zahl der Radonotope zum Zeitpunkt t
$N_{Rn,0}$	Anfangszahl der Radonotope zum Zeitpunkt $t = 0$
λ_{Rn}	Zerfallskonstante von Rn in 1/s
T	Zeit in s

Zur genauen Bestimmung der Radonexhalationsrate sollten die Prüfkammern nach außen so abgedichtet sein, dass über die Umgebungsluft kein zusätzliches Radon in die Kammer eingetragen, aber auch kein Radon undefiniert aus der Kammer ausgeht. Gleichzeitig sollten alle möglichen zusätzlichen Quellen identifiziert und ein Radoneintrag durch geeignete Maßnahmen möglichst verhindert werden.

Mögliche Quellen sind:

- Spülluft (bei erzeugtem Luftwechsel)
- Wasser zur Befeuchtung der Spülluft
- Einbauten und Messgeräte
- Isolierungen von Kabelmaterial, das in die Kammern gelegt wurde
- Kammermaterial selbst.

Können ausreichende Dichtheit erreicht und zusätzliche Radonquellen ausgeschlossen werden, sollte unter Berücksichtigung einer gewissen Abklingzeit in Abhängigkeit von der Zerfallsgeschwindigkeit des Radons eine Radonhintergrundkonzentration in der Nähe von 0 Bq/m^3 zu erreichen sein. Die Abklingzeit richtet sich nach der tatsächlichen Hintergrundkonzentration sowie der Radonhalbwertszeit von 3,8 Tagen. Eine Hintergrundkonzentration von nahe 0 Bq/m^3 kann jedoch nur als rechnerische Grenze angesehen werden, da die Messgeräte allesamt nicht in der Lage waren, bis zu diesem Grenzbereich zu messen. Des Weiteren konnte gezeigt werden, dass die Prüfkammersysteme nicht die notwendige Dichtheit besitzen und stets ein natürlicher Luftwechsel als gegeben angesehen und berücksichtigt werden muss. Auf dessen Ursachen wird im Abschnitt 3.3.3 genauer eingegangen.

In einem einfachen Versuch wurde untersucht, bis zu welchem Grad die Hintergrundkonzentration in einer 1 m^3 -Kammer unter Einhaltung einer Standzeit von 13 Tagen absinkt. Dazu wurde das ATMOS 12 DPX in die Kammer gestellt. Es ist wegen seiner sehr niedrigen unteren Nachweisgrenze von 2 Bq/m^3 das dafür am besten geeignete Gerät. Die immer noch bestehenden geräteseitigen Undichtigkeiten (Abschnitt 3.1.3) können sich hier nicht nachteilig auf die Messung auswirken, da allenfalls Kammerluft als Nebenluft eingesogen wird. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.10 dargestellt.

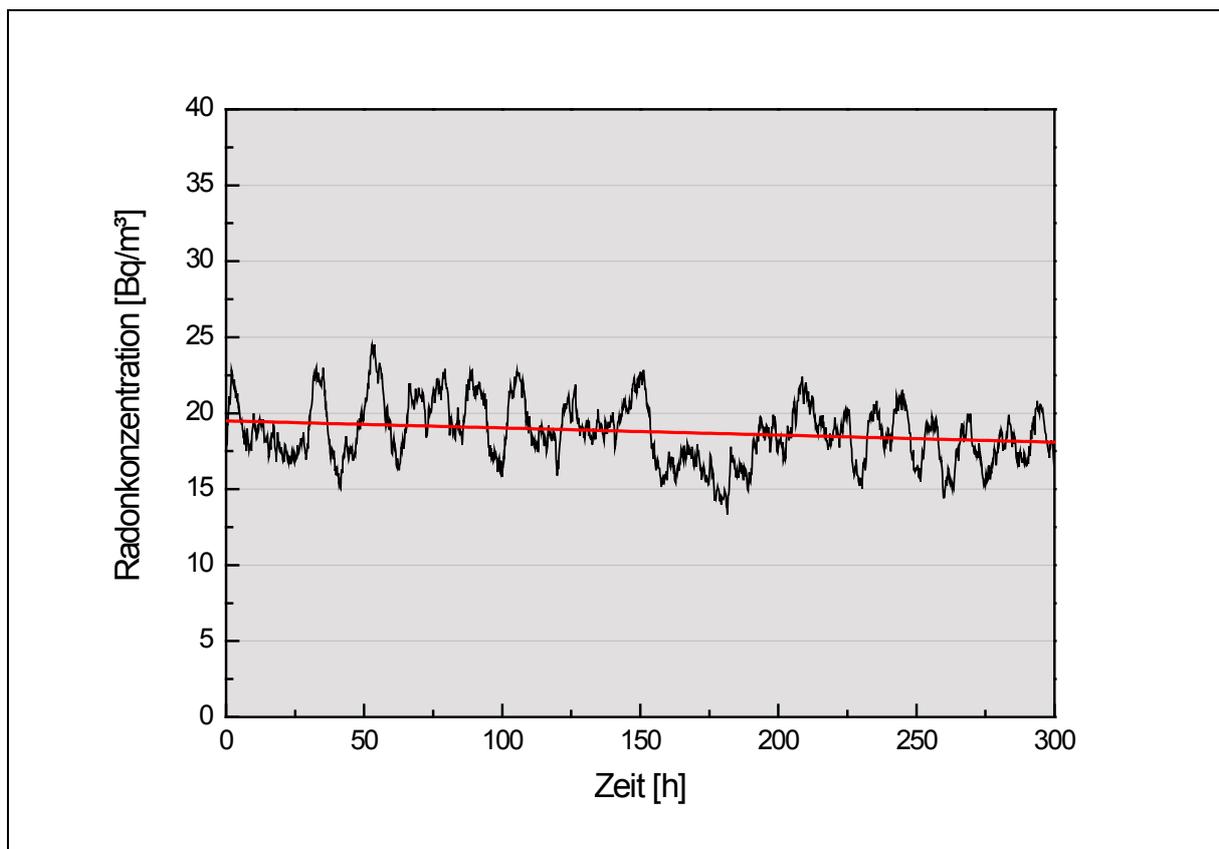


Abbildung 3.10: Verlauf der Radonhintergrundkonzentration in einer geschlossenen 1 m^3 -Prüfkammer bei ausgeschalteter Spülluft über einen Zeitraum von 13 Tagen

Lediglich eine Tendenz der Abnahme der Radonkonzentration ist zu erkennen, angedeutet durch die rote Regressionsgerade. Nach einer Standzeit von 13 Tagen hätte die Konzentration theoretisch um über 80 % abnehmen müssen. Das ist bei Weitem nicht der Fall. Das Ergebnis lässt den Schluss zu, dass die Prüfkammer wohl nicht über die ausreichende Dichtheit verfügt, die vonnöten gewesen wäre, um die Hintergrundkonzentration auf nahe 0 Bq/m³ abzusenken.

Es ist zu überlegen, ob eine solche Forderung nach absoluter Dichtheit realistisch ist. Letztendlich ist es realitätsnäher, die Materialprüfungen bei einem definierten - wegen der kleineren zu erwartenden Konzentrationen aber geringen - Luftwechsel durchzuführen. Der resultierende Überdruck in der Kammer würde dem Radon aus der Umgebung entgegenwirken. Um die Hintergrundkonzentration, die sich beim Einstellen des Prüfstücks in die Kammer einstellt, abzusenken, wäre es auch denkbar, die Kammer nach der Beladung mit radonfreier Luft so lange zu spülen, bis angenommen werden kann, dass die Kammerluft komplett ausgetauscht wurde. Im theoretischen Modell ist das nach ca. 5 Luftwechseln erfolgt. Im Anschluss an die Spülung kann mit der eigentlichen Exhalationsmessung begonnen werden.

Die oben angeführten Betrachtungen zur Kammerdichtheit sind aber hauptsächlich für den Fall relevant, bei dem kein künstlicher Luftwechsel eingestellt wird. Sämtliche in diesem Forschungsvorhaben durchgeführten Messungen erfolgten auf diese Weise. Daher wird in den folgenden Abschnitten die Luftwechselthematik genauer betrachtet.

3.3.2 Luftwechsel

Bei Emissionsmessungen spielt die Luftaustauschrate n eine große Rolle. Es ist anzunehmen, dass kein Innenraum vollständig von seiner Umgebung abgeschlossen wird, das heißt, es tritt Luft aus der Umgebung in den Innenraum ein, zum Ausgleich auch wieder aus. Dieser Vorgang ist aus lufthygienischer Sicht bedeutend. Auf diesem Weg werden Emissionen aus Einrichtungsgegenständen, Zigarettenrauch, menschlichen Aktivitäten, Putzmitteln usw., in ihrer Konzentration begrenzt.

Aus klimaschutztechnischen bzw. energetischen Gründen werden neue Gebäude heute sehr dicht gebaut, was zur Folge hat, dass der natürliche und prinzipiell gewollte Luftaustausch mit der Umgebung oft stark begrenzt wird. Dieser Umstand kann sich für den Raumnutzer negativ auf die Gesundheit auswirken, da Raumluft belastende Stoffe nicht mehr ausreichend abgeführt werden und sich daher anreichern können. Was üblicherweise für lufthygienische Betrachtungen in Bezug auf die Gruppen der TVOC, VOC und SVOC gilt, trifft in vergleichbarer Weise auch auf die Radonkonzentration im Innenraum zu.

Es war bereits bei den ersten Versuchen festzustellen, dass ein höherer eingestellter Luftwechsel bei der Vermessung der hier zur Verfügung stehenden Baumaterialien sich nachteilig auswirken kann. Bei allen Probekörpern handelte es sich um handelsübliche Produkte mit vergleichsweise geringem Exhalationsniveau.

Durch die Einleitung von Zuluft zur Erzeugung des Luftwechsels wurde die Radonkonzentration derart herabgesetzt, dass eine Differenzierung der Produkte nicht

mehr möglich war. Deshalb wurde von der ursprünglichen Vorgehensweise abgewichen und beschlossen, auf einen herbeigeführten Luftwechsel zu verzichten.

Bei einer angenommenen Luftwechselrate von Null her rscht Druckgleichheit zwischen dem Innenraum der Prüfkammer und seiner Umgebung. Undichtigkeiten im System spielen dann eine größere Rolle, als in dem Fall, dass die Kammer durchströmt wird und durch den vorliegenden Überdruck in der Kammer verhindert wird, dass Außenluft hineingelangt. Um die grundsätzliche Dichtheit der verwendeten Kammern (Glaseksikkator und 1 m³-Kammer) zu untersuchen, werden diese einer Luftwechselformung mit der im folgenden Abschnitt 3.3.2.1 beschriebenen Methode unterzogen.

3.3.2.1 Durchführung von Luftwechselformungen

Die Bestimmung sämtlicher Luftwechsel in diesem Forschungsvorhaben erfolgten gemäß der VDI-Richtlinie 4300 -Blatt 7 [21]. Dabei wird in die Prüfkammer als Tracergas Distickstoffoxid (N₂O) injiziert und die Konzentrationsabnahme über einen festgelegten Zeitraum verfolgt. Das Messgerät UNOR 6 N kam in diesem Vorhaben für sämtliche Messungen zum Einsatz.

Bei idealer Durchmischung eines Indikatorgases mit der Raumluft folgt das Abklingen der Tracergaskonzentration der Gleichung 3.5:

$$c_t = c_{t=t_0} \cdot e^{-n \cdot t} \quad (3.5)$$

Aus zwei Messwerten ergibt sich die Luftwechselzahl n nach Gleichung 3.6

$$n = \frac{1}{t_2 - t_1} \cdot \ln \frac{c_{t=t_1}}{c_{t=t_2}} \quad (3.6)$$

mit

- n Luftwechselzahl in h⁻¹
- t Zeitpunkt, bei dem die Konzentration des Tracergases (N₂O) ermittelt wurde
- $c_{t=t_0}$ Startkonzentration des Tracergases zum Zeitpunkt $t = t_0$ in ppm
- $c_{t=t_1}$ N₂O-Konzentration zum Zeitpunkt $t = t_1$ in ppm
- $c_{t=t_2}$ N₂O-Konzentration zum Zeitpunkt $t = t_2$ in ppm

Die Startkonzentration des Tracergases $c_{t=t_0}$ lag im oberen Drittel des Messbereiches des Messgerätes – hier von 0-1000 ppm N₂O.

3.3.2.2 Luftwechselformung an der 1 m³-Prüfkammer

Der Luftwechsel in der für die weiteren Messungen verwendeten 1 m³-Prüfkammer betrug $n = 0,028 \text{ d}^{-1} = 0,0012 \text{ h}^{-1}$. Dabei war die Spülluft ausgeschaltet. Es erfolgte zudem keine Klimatisierung und keine Homogenisierung der Kammerluft. Wie aus den Voruntersuchungen erwartet, wird der Wert $n = 0 \text{ h}^{-1}$ dennoch nicht erreicht.

Im Anschluss an die Luftwechselformung wurde die 1 m³-Kammer mit Leichtbetonsteinen beladen. Die Betriebsparameter wurden weiter auf der Einstellung „0“ belassen. Die Messung der Radonkonzentration zeigte einen deutlichen Anstieg. Nach ca. 9 Tagen wurde der Ventilator in der Kammer zur Homogenisierung der Kammerluft zugeschaltet. Ein drastischer Konzentrationseinbruch konnte verzeichnet werden (Abbildung 3.11). Eine weitere Luftwechselformung ergab einen Wert von $n = 0,48 \text{ d}^{-1} = 0,02 \text{ h}^{-1}$, also eine Erhöhung um den Faktor 17. Die Radonkonzentration sank von ca. 235 Bq/m³ auf ca. 120 Bq/m³. Sie wurde mit dem RADIM 3 A gemessen. Die durch den Ventilator verwirbelte Luft übt offenbar einen derart großen Einfluss auf die Leckage aus, dass die bestehenden Undichtigkeiten zu höheren Luftaustauschraten führen.

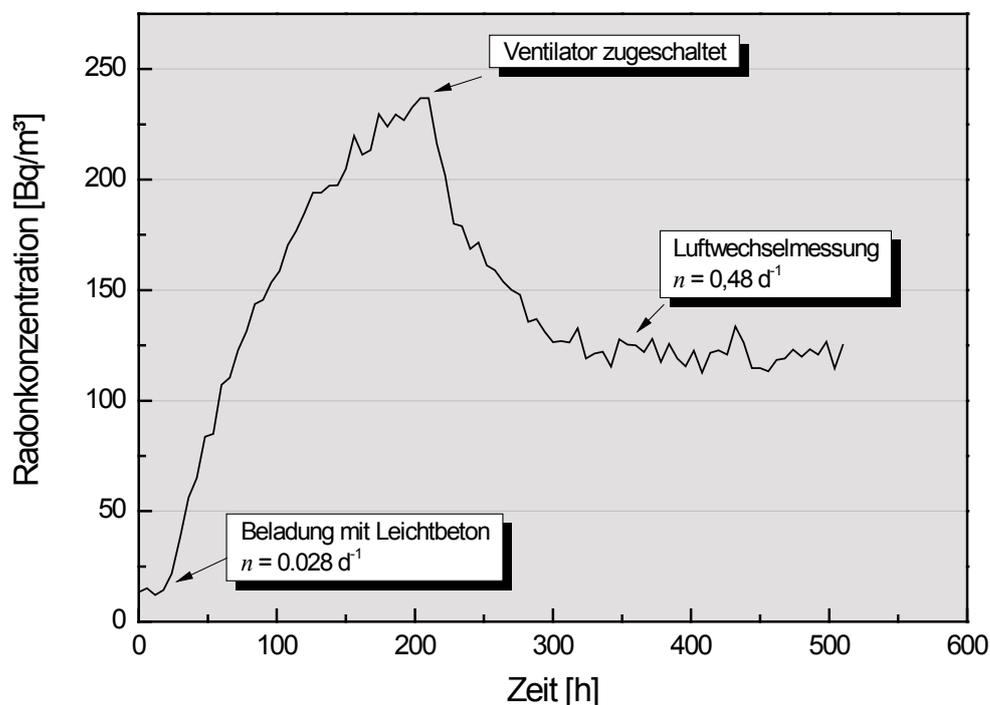


Abbildung 3.11: Auswirkung des Luftwechsels auf eine Radonexhalationsmessung mit Leichtbeton

3.3.2.3 Luftwechselformung in Kleinprüfkammer (22 L -Glasexsikkator)

Die Luftwechselformung in der Kleinprüfkammer ergab einen Wert von $n = 0,12 \text{ d}^{-1} = 0,0052 \text{ h}^{-1}$.

Da es eine Grundidee gewesen war, das ATMOS 12 DPX zu Parallelmessungen an verschiedenen kleineren Kammern zu verwenden, darf das Messgerät keinen zusätzlichen Beitrag zum Luftwechsel leisten. Im Bypass-Betrieb, bei dem kontinuierlich Luft der Kammer entnommen und gleichzeitig mit gleichem Volumenstrom wieder zurückgeführt wird, sollte das theoretisch ausgeschlossen sein. Wegen der anfänglichen Schwierigkeiten bzgl. der Dichtheit (Abschnitt 3.1.3) sollte in dem im Folgenden beschriebenen Versuch überprüft werden, ob die Abdichtungsmaßnahmen durch die Geräteherstellerfirma erfolgreich waren.

Eine 22 L –Kammer wurde mit einem Lehmstein beladen. Die Versuchsanordnung entspricht der im Abschnitt 3.4.1 beschriebenen. Nach etwa 20 Tagen (480 h) hatte sich eine Maximalkonzentration von ca. 810 Bq/m³ eingestellt (Abbildung 3.12). Die Messung erfolgte intern mit dem RADONSCOUT und sollte parallel mit dem ATMOS 12 DPX, das im Bypass an den Exsikkator angeschlossen wurde, verglichen werden. In der Folge ist eine deutliche Radondepression zu verzeichnen. Die Konzentration sank auf ca. 490 Bq/m³, was einer Verminderung von fast 40 % entspricht.

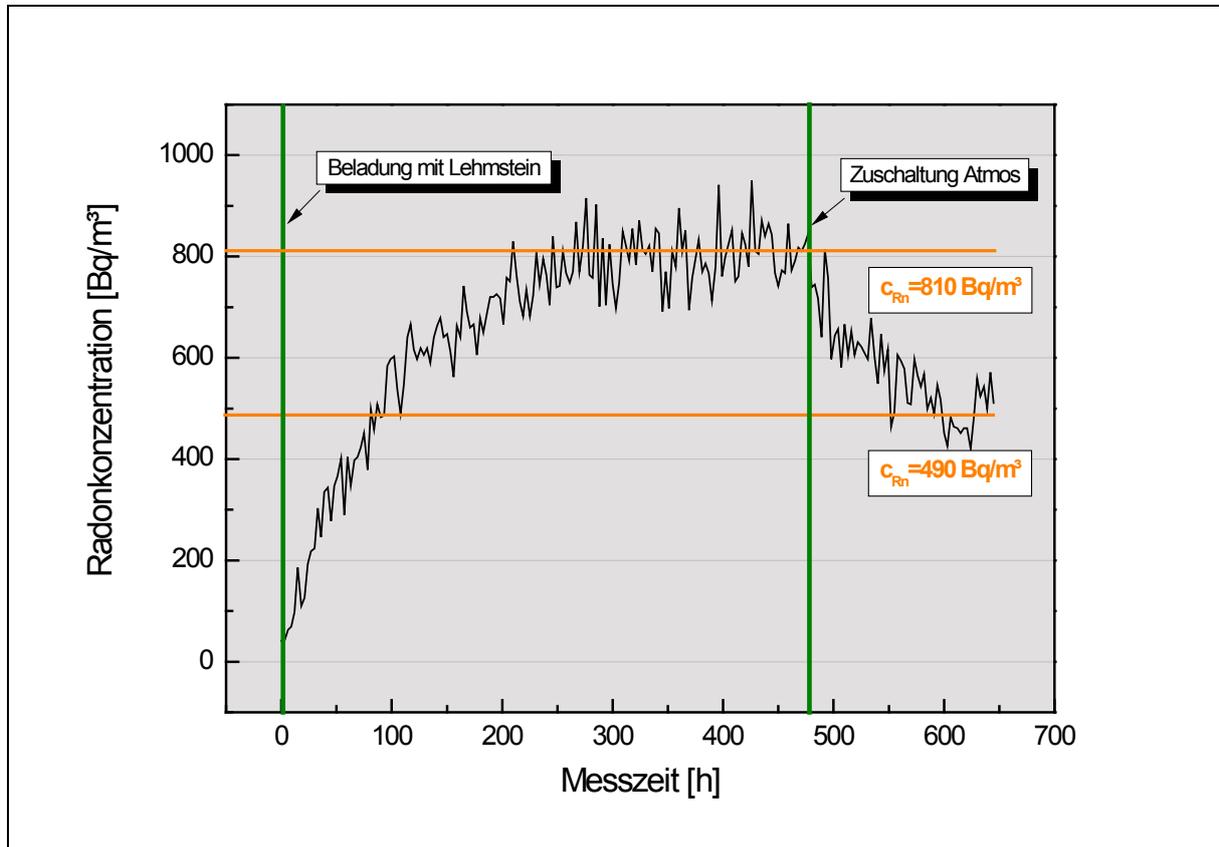


Abbildung 3.12: Auswirkungen des durch das ATMOS 12 DPX verursachten Luftwechsels auf die Messung der Radonexhalation eines Lehmsteins. Die Konzentrationsangaben wurden durch Kurvenanpassung bestimmt.

Die abschließende Luftwechselbestimmung ergab einen Wert von $n = 0,24 \text{ d}^{-1}$, was einer Erhöhung um den Faktor 2 entspricht. Theoretisch sollte sich bei einer Verdoppelung der Luftaustauschrate die gemessene Konzentration halbieren. Das ist hier offenbar nicht der Fall und deckt sich mit den Beobachtungen von Jann et al., dass keine direkte Proportionalität wie bei VOC-Messungen zu bestehen scheint.

Die in den Abschnitten 3.3.2.2 und 3.3.2.3 beschriebenen Ergebnisse verdeutlichen, dass auch bei einem vermeintlichen Luftwechsel von Null, also bei der Annahme eines statischen Prüfsystems, ein Luftaustausch festzustellen ist. Sämtliche Abdichtungsmaßnahmen führten nicht zu einem so dichten System, dass sich der Luftwechsel vernachlässigen lässt. Auf mögliche Folgen für die Exhalationsmessung wird im Abschnitt 3.3.3 eingegangen.

Geringfügige Luftaustauschvorgänge sind umso bedeutsamer, je kleiner die Messkammer gewählt wird. Das würde besonders bei den Messungen mit dem

ATMOS 12 DPX an der Kleinprüfkammer deutlich. Die am Gerät bestehenden Undichtigkeiten hatten massiven Einfluss auf die gemessene Radonkonzentration. Mit geringeren Auswirkungen ist bei der Verwendung einer Prüfkammer größeren Volumens zu rechnen.

Bei einer Verdopplung des Luftwechsels wurde zwar keine Halbierung der Radonkonzentration erreicht, aber hier handelt es sich auch nicht um praxisübliche Luftwechsel. In der Praxis werden zwar zunehmend geringe Luftwechsel registriert, doch befinden sie sich selten im Bereich unter $0,1 \text{ h}^{-1}$ bzw. $2,4 \text{ d}^{-1}$. Damit wären Radonkonzentrationen zu erwarten, die im Bereich eines Fünftels bis Zehntels der gemessenen Konzentrationen zu finden sind. Bei Hintergrundkonzentrationen von 18 bis 30 Bq/m^3 ist dann eine ausreichende Differenzierung der Probenkörper bzw. die Eliminierung des Hintergrunds kaum mehr möglich. Die Situation würde noch verschärft bei messtechnisch üblichen Luftwechseln im Bereich von $0,5 \text{ h}^{-1}$ (12 d^{-1}).

Es kann insgesamt festgestellt werden, dass die Einstellung eines erzwungenen hohen Luftwechsels von $n = 0,5 \text{ h}^{-1}$, wie ihn bestehende Prüfnormen für VOC-Messungen vorsehen, für Radonexhalationsmessungen der in diesem Forschungsvorhaben zur Verfügung stehenden Baumaterialien nicht praktikabel erscheint. Insbesondere ist davon auszugehen, dass unter diesen Bedingungen eine ausreichende Differenzierung der Materialien nicht gegeben ist. Vielmehr muss auf einen erzwungenen, praxisnahen Luftwechsel verzichtet werden. Der natürliche Luftwechsel in jeder Kammer ist genau zu bestimmen oder definiert auf einen deutlich geringeren Wert als $0,5 \text{ h}^{-1}$ einzustellen.

Für eine realitätsnahe Prüfung kann der im Innenraum herrschende natürliche Luftwechsel nicht außer Acht gelassen werden. Der nach ISO 16000-9 für eine VOC-Prüfung empfohlene Luftwechsel liegt bei $n = 0,5 \text{ h}^{-1}$ und damit um den Faktor 50 höher, als der durch das ATMOS 12 DPX in dem Glasexsikkator erzeugte ($n = 0,01 \text{ h}^{-1}$). Das bedeutet aber, dass sämtliche hier verwendeten Materialien nur sehr geringe zusätzliche Radonkonzentrationen unter Realraumbedingungen erzeugen würden. Eine Messung mit den zur Verfügung stehenden Messgeräten in diesem Messbereich erscheint jedoch unmöglich.

3.3.3 Beeinflussung der Exhalationsmessung durch Luftdruckschwankungen

Im Folgenden wird versucht, die Auswirkung des Luftdrucks auf die Exhalationsmessung zu untersuchen. In den Diagrammen sind Ausschnitte der Maximalkonzentrationen verschiedener Messungen dargestellt. Der parallel zur Exhalationsmessung gemessene Luftdruck ist mit eingezeichnet. Es wird darauf hingewiesen, dass es sich bei den Ergebnissen lediglich um Indizien für einen möglichen Einfluss handelt.

Beispiel 1: Vermessung einer Lehmbauplatte in der 1 m³-Prüfkammer mit dem RADIM 3 A, die Maximalkonzentration lag bei durchschnittlich 67 Bq/m³.

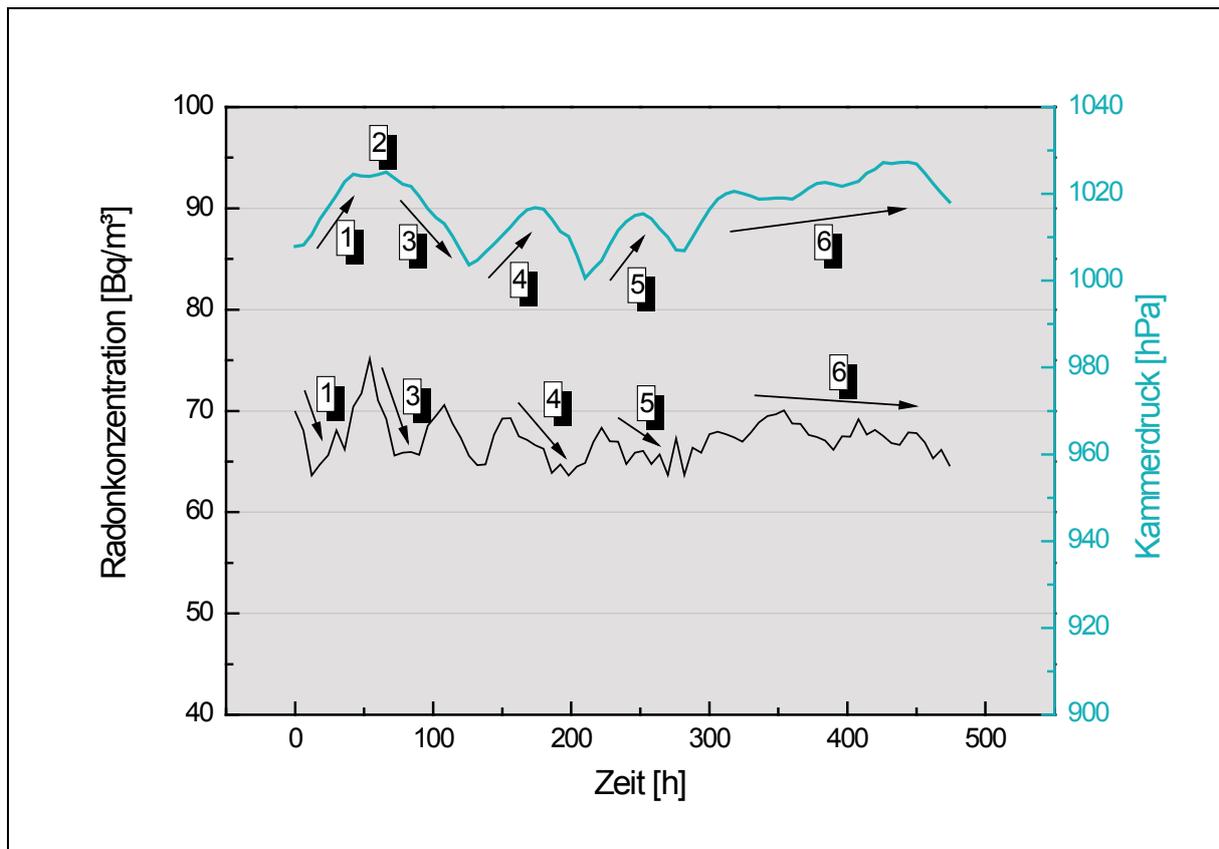


Abbildung 3.13: Verläufe der Radonmaximalkonzentration einer in der 1 m³-Kammer vermessenen Lehmbauplatte sowie des parallel gemessenen Luftdrucks

Erhöhter Luftdruck wirkt auf die undichten Stellen an der Prüfkammer und führt zum Eindringen von Außenluft. Daraus resultiert eine Verdünnung. Bei den Ziffern 1, 4, 5 und 6 in der Abbildung 3.13 geht der Druckanstieg mit einem Konzentrationsabfall einher. Bei Ziffer 2 bleibt der Luftdruck für einige Stunden stabil. An diesem Punkt deutet sich eine Erholung des Systems an. Es wird keine Außenluft mehr nach innen befördert, die Radonkonzentration kann wieder ansteigen. Am Punkt 3 verlaufen Druck- und Konzentrationsabfall parallel. Hier ist die These nicht in Übereinstimmung mit den Messwerten.

Beispiel 2: Vermessung von 8 Leichtbetonsteinen in der 1 m³-Prüfkammer mit dem RADIM 3 A, die Maximalkonzentration lag bei durchschnittlich 120 Bq/m³.

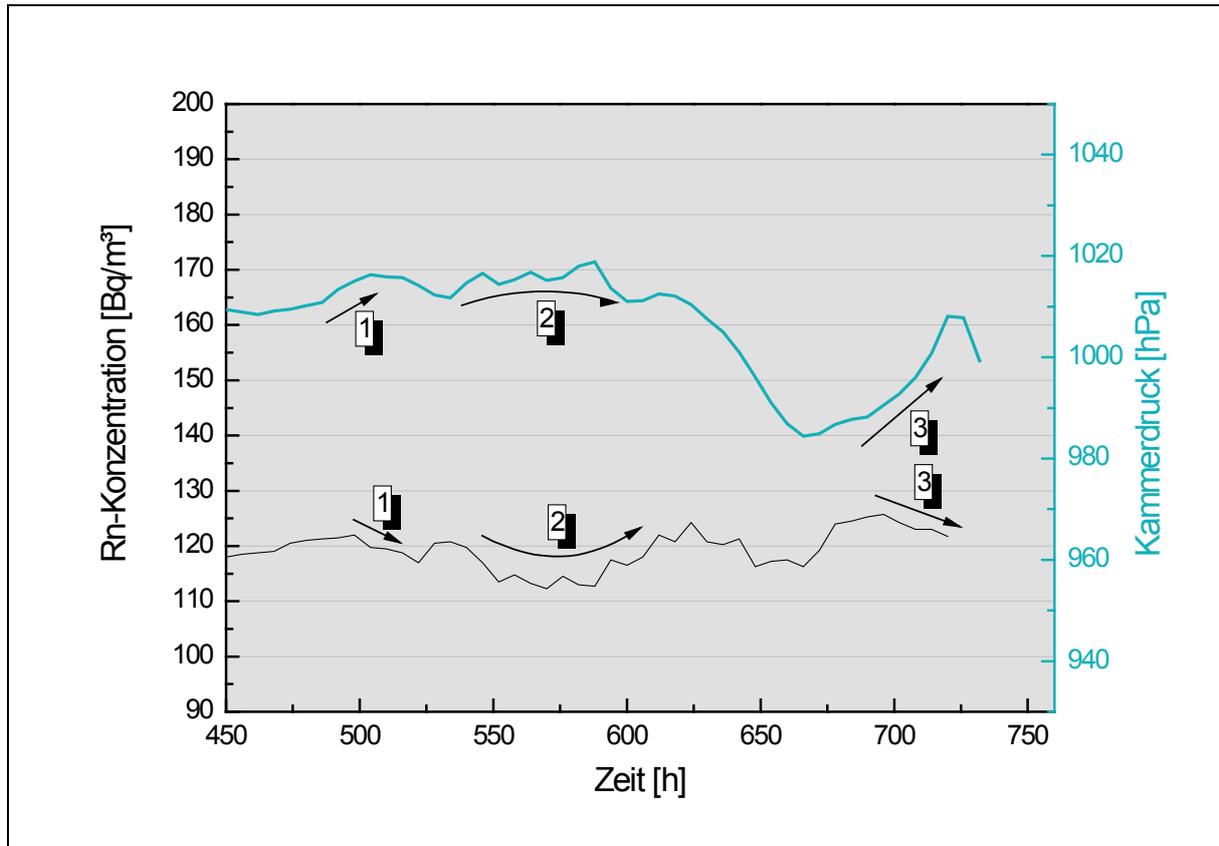


Abbildung 3.14: Verläufe der Radonmaximalkonzentration von 8 in der 1 m³-Kammer vermessenen Leichtbetonsteinen sowie des parallel gemessenen Luftdrucks

Das im Beispiel 1 erläuterte Prinzip wird in der Abbildung 3.14 deutlicher. Dem leichten Druckanstieg bei Ziffer 1 folgt ein leichter Abfall der Radonkonzentration, gefolgt von einer kurzen Erholungsphase der Konzentration. Auch bei Ziffer 2 verlaufen Konzentrationsabfall und -anstieg indirekt proportional. Aus dem darauf folgenden verhältnismäßig massiven Druckabfall resultiert bei dem Konzentrationsverlauf kein nennenswerter Effekt. In diesem Fall arbeitet die Kammerluft gegen die Leckage und verhindert damit einen weiteren Luftaustausch. Eine Verdünnung der Kammerluft tritt nicht ein. Konzentrationsänderungen resultieren dann vorwiegend aus Exhalation und radioaktivem Zerfall. Dem bei Ziffer 3 erfolgenden Druckanstieg folgt dann tendenziell ein Konzentrationsabfall.

Wie bereits einleitend erwähnt, können die beschriebenen Beobachtungen lediglich als Indiz für eine Wirkung des Luftdrucks auf die Radonkonzentration in der Kammer gewertet werden. Deshalb darf dieser Luftwechsel, der einer Art „Atmung“ der Kammer ähnelt, nicht außer Acht gelassen werden. Bei Exhalationsmessungen ohne erzwungenen Luftwechsel, muss der „natürliche“ Luftwechsel bekannt sein. Er ist für jede Kammer anders und muss genau bestimmt werden. Wenn er bekannt ist, kann die gemessene Konzentration, wie nachfolgend beschrieben, um diesen Wert korrigiert werden. Auf diese Weise erhält man eine luftwechselunabhängige Bewertung für Bauprodukte.

3.4 Durchführung von Exhalationsmessungen

Verschiedene Exhalationsmessungen wurden in Kleinprüfkammern und der 1 m³-Prüfkammer durchgeführt. Hierbei stand weniger die Materialcharakterisierung bzgl. der Radonexhalation der einzelnen Proben im Fokus als vielmehr der Erkenntnisgewinn, der zu einer geeigneten Versuchsanordnung führen soll.

Über die Einbeziehung des flächen- bzw. massenspezifischen Beladungsfaktors L wurde die Übertragbarkeit der Messergebnisse auf unterschiedliche Kammervolumina untersucht (Abschnitt 3.4.1.3). Des Weiteren wurde in der größeren 1 m³-Kammer überprüft, ob die Festlegung des Standortes des Messgeräts relevant ist. Das erfolgte durch Positionsveränderung des Messgeräts und anschließende Wiederholungsmessung (Abschnitt 3.4.2).

Während der Vorhabenslaufzeit erfolgten Untersuchungen an allen zur Verfügung stehenden wandbildenden Materialien (Abschnitt 3.1.4). Sie wurden wegen der geringen zu erwartenden Konzentration, die sich in Vorversuchen bestätigt hatte, entgegen der ursprünglichen Intention, allesamt ohne künstlichen Luftwechsel, d. h. im quasistatischen Messsystem, durchgeführt. Wegen der relativ großen Anzahl an zur Verfügung gestellten Leichtbetonsteinen und der Tatsache, dass sie auch vergleichsweise hohe Exhalationswerte aufwiesen, wurden mit ihnen hauptsächlich die im Folgenden beschriebenen Messreihen durchgeführt.

3.4.1 Messung der Radonexhalation von Leichtbetonsteinen in der 1 m³-Kammer

3.4.1.1 Separate Anordnung

Die Leichtbetonsteine wurden auf einem gitterartigen Podest derart angeordnet, dass sie einzeln und in einigem Abstand zu den anderen Steinen stehen (Abbildung 3.15). Auf diese Weise kann das Radon über die gesamte Fläche der Prüfkörper exhalieren. Als Messgerät kam das RADIM 3 A zum Einsatz. Wie in der Abbildung sichtbar, wurde es auf den Kammerboden unterhalb des Podests platziert. Der Versuch wurde mit einer unterschiedlichen Anzahl an Leichtbetonsteinen durchgeführt (4, 8, 12 und 16 Steine). Auf diese Weise sollte festgestellt werden, ob sich gemessene Radonkonzentration proportional zur Änderung der Prüfkammerbeladung verhält.

Nach jeweils etwa 3, 5 Wochen zeichnete sich eine Maximalkonzentration ab, woraufhin dann der Versuch abgebrochen wurde.

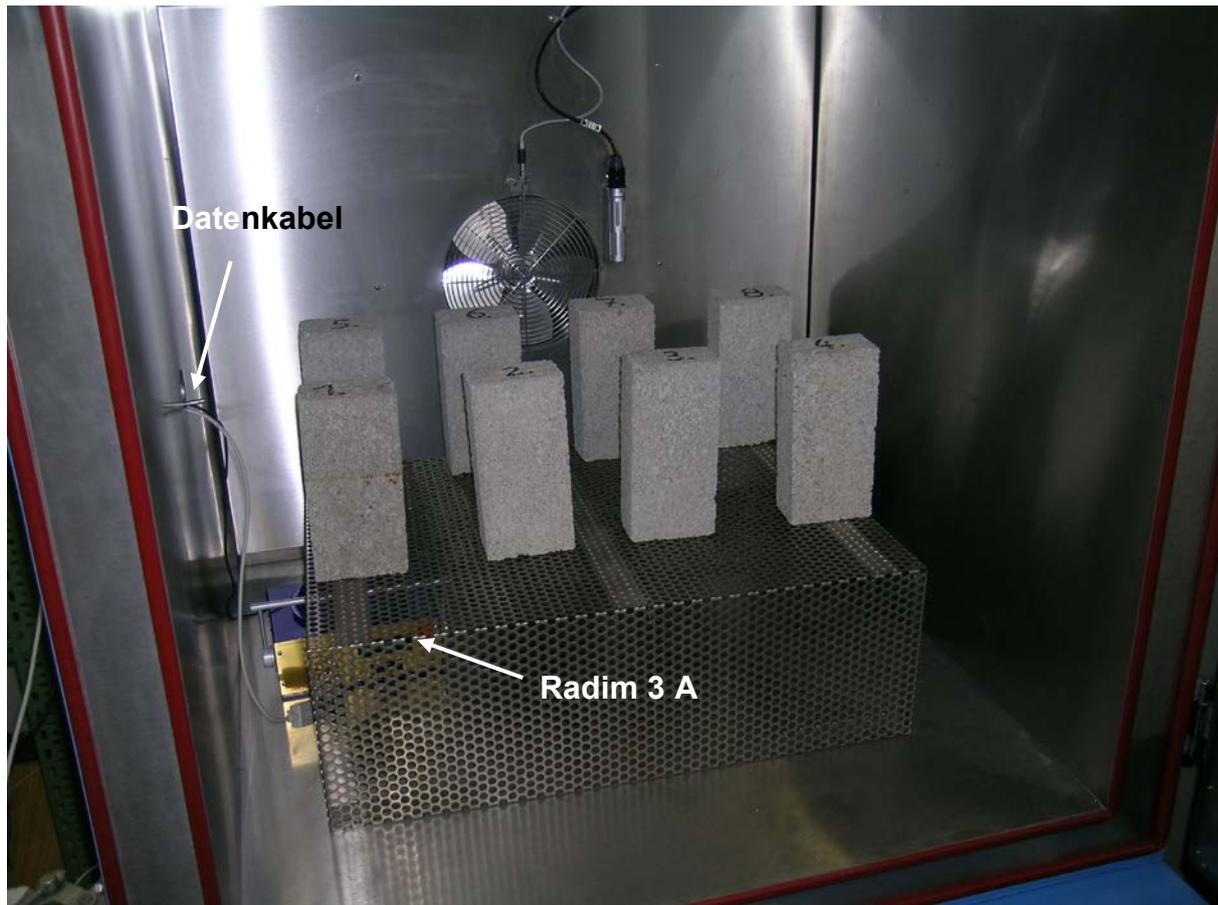


Abbildung 3.15: 8 Leichtbetonsteine in 1 m³-Kammer einzeln auf durchlässigem Edelstahlpodest angeordnet

3.4.1.2 Kompakte Anordnung

16 Leichtbetonsteine wurden nun kompakt zusammengestellt (Abbildung 3.16), wobei die Steine in direktem Kontakt zueinander stehen.

Es war das Ziel, herauszufinden, ob für die Radonexhalation ein Flächenbezug, ähnlich den VOC-Messungen, angenommen werden kann. Da die absolute Exhalationsoberfläche durch die kompakte Anordnung um den Faktor 2,7 (Relation Gesamtoberfläche $S_{\text{Steine}}^{\text{einzel}}$: 1,69 m² / Gesamtoberfläche $S_{\text{Steine}}^{\text{kompakt}}$: 0,62 m²) reduziert wurde, sollte auch die gemessene Radonkonzentration im Falle einer flächenspezifischen Exhalation eine Verkleinerung erfahren. Wäre dies der Fall, müsste über die Anordnung der Probekörper im Prüfraum einer Vereinbarung getroffen werden, denn dann hätte die Probenanordnung Einfluss auf das Messergebnis.

Nach etwa 3,5 Wochen zeichnete sich auch hier eine Maximalkonzentration ab.



Abbildung 3.16: Anordnung der 16 Leichtbetonsteine in Kompaktbauweise

3.4.1.3 Messungen in Kleinprüfkammer

Parallel zu den Messungen in der 1 m³-Kammer wurde ein Leichtbetonstein sowie alle übrigen zur Verfügung stehenden Materialien in einem Exsikkator vermessen (Abbildung 3.17). Die Messung erfolgte hier mit dem RADONSCOUT. Die Anordnung in der kleinen Kammer erlaubte es gerade, ein komplettes, unverändertes Prüfstück so einzustellen, dass mittels Rührer eine Homogenisierung der Kammerluft noch möglich war.



Abbildung 3.17: Leichtbetonstein in Kleinemissionskammer ($V = 21,9 \text{ L}$) bei $n \approx 0$ ($n = 0,13 \text{ d}^{-1}$) und Homogenisierung der Probenluft mittels Rührer

Es sollte einerseits überprüft werden, ob mit der Verfahrensweise eine Materialdifferenzierung möglich ist, andererseits, ob im Falle der Messungen an Leichtbeton eine Vergleichbarkeit der erhaltenen Messwerte in beiden Kammertypen besteht. Diese Feststellung erfolgt über Auftragung der Radonkonzentrationswerte über den flächen- bzw. massenbezogenen Beladungsfaktor $L_{A/m}$, der sich nach den Gleichungen 3.7 und 3.8 berechnen lässt. Voraussetzung für diesen Vergleich ist die Homogenität des Probenmaterials.

$$L_A = \frac{A_P}{V_K}, \quad (3.7)$$

bzw.

$$L_m = \frac{m_P}{V_K} \quad (3.8)$$

mit

$L_{A/m}$ flächenspezifischer (A) bzw. massenspezifischer (m) Beladungsfaktor in m^2/m^3
bzw. kg/m^3

V_K Prüfkammervolumen in m^3

A_P exhalierende Prüfkörperoberfläche in m^2

m_P Masse des Prüfkörpers in kg

Liegt Übertragbarkeit vor, sollte ein linearer Zusammenhang zwischen Konzentration und L erkennbar sein. Die Ergebnisse dieses Vergleichs werden im Abschnitt 4.3 diskutiert.

3.4.2 Änderung der Messposition des RADIM 3 A

Mit seiner Atommasse von 222 g/mol ist ^{222}Rn sehr viel schwerer als die Hauptbestandteile der Luft (Stickstoff: 28 g/mol, Sauerstoff: 32 g/mol). Daher liegt die Vermutung nahe, dass, im Falle ungenügender bzw. gar nicht vorhandener Homogenisierung der Luft in der Prüfkammer bzw. im Innenraum, eine Radonanreicherung auf dem Boden erfolgen könnte. Die richtige Positionierung des Messgerätes hätte dann Einfluss auf das Messergebnis. Dabei spielt auch die Dimensionierung der Prüfkammer eine Rolle. Die Wahrscheinlichkeit der Ausbildung eines Radonkonzentrationsgradienten über die Kammerhöhe mit der Konsequenz einer Radonanreicherung in Kammerbodennähe ist bei großen, ausgedehnten Kammern wie der 1 m³-Kammer deutlich größer als in dem ca. 45-fach kleineren Exsikkator (22 L-Kammer). Die Untersuchung eines solchen möglichen Effekts erfolgte mit der in der Abbildung 3.17 dargestellten Versuchsanordnung. Lediglich das Messgerät wurde vom Kammerboden um 74 cm angehoben (Abbildung 3.18). Das Ergebnis wird im Abschnitt 4.5 diskutiert.



Abbildung 3.18: Positionsänderung des RADIM 3 A vom Kammerboden in das obere Kammerviertel

3.5 Abdichtungsmaßnahmen

In ISO 16000-11 [19] wird beschrieben, wie Prüfstücke für die VOC-Emissionsmessungen vorzubereiten sind. Grundsätzlich soll nur die Seite frei bleiben, die in der Praxis dem Innenraum zugewandt ist. Schmalflächen sowie die dem Raum abgewandte Seite werden versiegelt, in der Regel mit selbstklebendem Aluminiumband.

Für die Durchführung solcher Abdichtungsmaßnahmen standen die im Abschnitt 3.1.4 aufgeführten Materialien zur Verfügung. Die Tests wurden in einem Fall mit einem Leichtbetonstein, ansonsten mit einem Lehmstein in einer Kleinprüfkammer über einen Zeitraum von jeweils vier Tagen ohne künstlichen Luftwechsel mit dem ATMOS 12 DPX als Messgerät durchgeführt. Dazu muss angemerkt werden, dass der geräteseitige Einfluss auf den Luftwechsel in der Kammer aufgrund der Geräteundichtigkeiten erst während dieser Versuche auffiel (vgl. Abschnitt 3.1.3). Auf die Aussagekraft der Ergebnisse hatte das allerdings nur untergeordneten Einfluss.

Die Homogenisierung der Kammerluft (22 L) wurde durch Einschalten des Rührers gewährleistet. Einen Einfluss auf die Dichte hatte die Ventilation hier nicht. Alle Untersuchungen wurden mit laufendem Ventilator durchgeführt. Das hat insbesondere Einfluss auf die Luftwechsellmessungen, weil dadurch Inhomogenitäten nach der Tracergasinjektion vermieden werden. Um die prinzipielle Eignung der Dichtungsmaterialien zu überprüfen, wurde der Prüfkörper komplett damit eingeschlagen (Abbildung 3.19). Erwartet wurde eine Radonkonzentration, die sich nur unwesentlich von der Hintergrundkonzentration, die mit 25 Bq/m^3 bestimmt wurde, unterscheidet. Jeglicher signifikanter Konzentrationsanstieg würde die Nichteignung als Abdichtungsmaterial bedeuten. Die Ergebnisse werden in Abschnitt 4.4 diskutiert.



Abbildung 3.19: Lehmstein komplett doppelt umwickelt in aluminiumkaschierter Kunststoffverbundfolie (links) und in kaltselfklebender Bitumenbahn (rechts)

4 Darstellung und Diskussion der Ergebnisse der Exhalationsmessungen

Nachstehend werden die Ergebnisse der Messungen in der 1 m³- sowie 22 L-Kleinprüfkammer dargestellt. Ausführliche Messreihen zur Überprüfung des Flächen- oder Massenbezugs des Exhalationsvorgangs erfolgten vorwiegend mit Leichtbeton in der 1 m³-Kammer, der eine signifikante Radonexhalation aufweist und in ausreichender Stückzahl zur Verfügung stand.

Die übrigen Proben wurden im Exsikkator untersucht, um die Möglichkeiten einer Materialdifferenzierung zu erarbeiten.

4.1 Messungen in der 1 m³-Kammer

In der 1 m³-Kammer wurden verschiedene Messungen mit einer unterschiedlichen Anzahl an Leichtbetonsteinen durchgeführt. Sie erfolgten alle mit dem RADIM 3 A statisch, ohne eingestellten Luftwechsel, über einen Zeitraum von je ca. vier Wochen.

In Abbildung 4.1 sind die Konzentrationsverläufe der jeweiligen Messreihen dargestellt. Die mittleren Konzentrationswerte wurden über eine Kurvenanpassung mit dem Auswerteprogramm Origin⁵ bestimmt und sind in Tabelle 4.1 aufgelistet.

⁵ © OriginLab Corporation

4 Darstellung und Diskussion der Ergebnisse

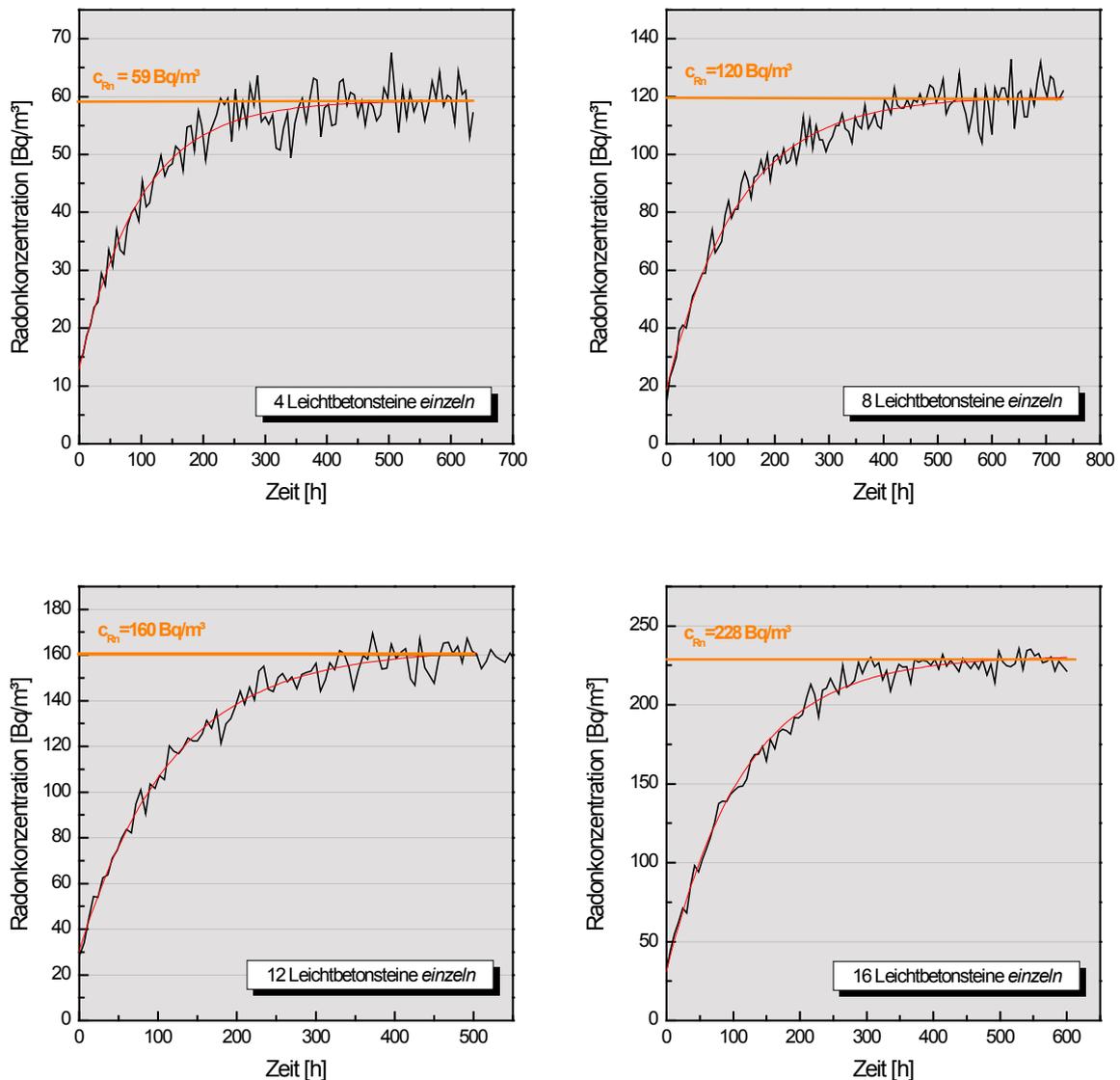


Abbildung 4.1: Konzentrationsverläufe der Messreihen mit Leichtbeton in der 1 m³-Kammer bei $n \approx 0 \text{ h}^{-1}$ über einen Zeitraum von mindestens 3 Wochen

Zur späteren Berechnung der Radonexhalationsrate nach der VOC-Kammermethode wird an dieser Stelle die flächen- bzw. massenspezifische Luftdurchflussrate $q_{A/m}$ neu eingeführt. Dies ist sinnvoll, da sich die Kammern, wie gezeigt, nicht luftwechselfrei betreiben lassen. Die Berechnung erfolgt über die Gleichungen 4.1 und 4.2. Der Beladungsfaktor $L_{A/m}$ geht in die Berechnung mit ein.

$$q_A = \frac{n}{L_A} = \frac{n \cdot V_K}{A_P} \quad (4.1)$$

$$q_m = \frac{n}{L_m} = \frac{n \cdot V_K}{m_P} \quad (4.2)$$

mit

$q_{A/m}$	flächenspezifische (A) bzw. massenspezifische (m) Luftdurchflussrate in $\text{m}^3/(\text{m}^2 \text{ h})$ bzw. $\text{m}^3/(\text{kg h})$
n	Luftwechselrate in Prüfkammer in h^{-1}
$L_{A/m}$	flächenspezifischer (A) bzw. massenspezifischer (m) Beladungsfaktor in m^2/m^3 bzw. kg/m^3
V_K	Prüfkammervolumen in m^3
A_P	exhalierende Prüfkörperoberfläche in m^2
m_P	Masse des Prüfkörpers in kg

Wie im Abschnitt 4.3 noch erläutert wird, hat sich herausgestellt, dass bei der Berechnung von $q_{A/m}$ nicht nur der mittels der Tracergasmethode bestimmte „natürliche“ Kammerluftwechsel n berücksichtigt werden muss, sondern auch die Radonzerfallsrate λ_{Rn} ($0,00755 \text{ h}^{-1}$), die wie ein Luftwechsel wirkt. Es ergibt sich somit ein „effektiver“ Luftwechsel n_{eff} als Summe von n und λ_{Rn} . (Gleichung 4.3).

$$n_{eff} = \lambda_{Rn} + n \quad (4.3)$$

Tabelle 4.1: Ergebnisse der Messreihen mit Leichtbeton zur Konzentrationsbestimmung. Zusätzlich sind die Werte der flächen- und massebezogenen Luftdurchflussraten q_A und q_m sowie die Beladungsfaktoren L_A und L_m angegeben. Der „natürliche“ Kammerluftwechsel wurde mit $0,0012 \text{ h}^{-1}$ bestimmt. Es ergibt sich ein effektiver Luftwechsel von $0,0088 \text{ h}^{-1}$.

Versuchsanordnung	Exhalierende Oberfläche A [m^2]	Gesamtmasse m [kg]	L_A [m^2/m^3]	L_m [kg/m^3]	q_A [$\text{m}^3/\text{m}^2 \text{ h}$]	q_m [$\text{m}^3/\text{kg h}$]	Gemessene Rn-Konzentration [Bq/m^3]
4 St. einzeln	0,43	9,4	0,43	9,4	0,0202	0,00092	59
8 St. einzeln	0,85	18,7	0,85	18,7	0,0101	0,00046	120
12 St. einzeln	1,27	27,6	1,27	27,6	0,0067	0,00031	160
16 St. einzeln	1,69	37,3	1,69	37,3	0,0050	0,00023	228
16 St. kompakt	0,62	37,3	0,62	37,3	0,0137	0,00023	225

Die Ergebnisse machen deutlich, dass mit der Vervielfachung der Prüfkörperanzahl auch eine Erhöhung der Radonkonzentration in gleicher Größenordnung einhergeht.

Nicht erwartet wurde das identische Messergebnis der beiden Messreihen mit 16 einzeln in der Kammer aufgestellten Leichtbetonsteinen und deren kompakter Anordnung. Aus der Verkleinerung der Oberfläche sollte auch eine Verminderung der Radonexhalation resultieren. Das ist hier nicht der Fall. Daher ist zu vermuten, dass im vorliegenden Fall, d. h. zumindest für den Leichtbeton, keine flächenabhängige Exhalation besteht. Es scheint, dass Radon, das nicht durch die abgesperrten Flächen exhalieren kann, nun in entsprechend stärkerem Ausmaß durch die freien Flächen aus dem Material diffundiert.

4.2 Messungen in der Kleinprüfkammer

Sämtliche Wandbildner wurden auch in der Kleinprüfkammer mit dem RADONSCOUT als Messgerät untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.2 zusammenfassend dargestellt. Sie beruhen auf Messungen in einer Emissionskammer mit einem „natürlichen“ Luftwechsel von $0,12 \text{ d}^{-1}$ bzw. $0,0052 \text{ h}^{-1}$ bzw. einem effektiven Luftwechsel von $0,013 \text{ h}^{-1}$.

Tabelle 4.2: Ergebnisse der Messungen in der Kleinprüfkammer ($V = 22 \text{ L}$). Zusätzlich sind die Werte der flächen- und massebezogenen Luftdurchflussraten q_A und q_m sowie die Beladungsfaktoren L_A und L_m angegeben. Der „natürliche“ Kammerluftwechsel wurde mit $0,0052 \text{ h}^{-1}$ bestimmt. Es ergibt sich ein effektiver Luftwechsel von $0,013 \text{ h}^{-1}$.

Material	Exhalierende Oberfläche A [m^2]	Gesamtmasse m [kg]	L_A [m^2/m^3]	L_m [kg/m^3]	q_A [$\text{m}^3/\text{m}^2 \text{ h}$]	q_m [$\text{m}^3/\text{kg h}$]	Gemesene Rn-Konzentration [Bq/m^3]
Lehmstein, Stroh	0,1056	1,308	4,8	59,5	0,0027	0,00022	810
Lehmstein	0,1056	2,250	4,8	102,3	0,0027	0,00013	690
Leichtbeton	0,1056	2,332	4,8	106,0	0,0027	0,00012	560
Kompaktziegel	0,1056	4,355	4,8	198	0,0027	0,000066	27 ¹⁾
Hochlochziegel	0,1354	2,619	6,2 ²⁾	119,0	0,0021 ²⁾	0,00011	22 ¹⁾

¹⁾ nicht signifikant verschieden von Hintergrundkonzentration ($19 \pm 2 \text{ Bq}/\text{m}^3$ bis $25 \pm 2 \text{ Bq}/\text{m}^3$) oder im Bereich der Bestimmungsgrenze des Messgerätes

²⁾ Auf äußere Abmaße bezogen, aufgrund der integrierten Hohlräume ist die tatsächliche Oberfläche größer.

Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass mit der geschilderten Versuchsanordnung eine Materialdifferenzierung möglich ist. Der Lehmstein mit Strohzuschlag weist hier die größten Radonkonzentrationen auf, gefolgt von Lehmstein, Leichtbeton sowie Kompakt- und Hochlochziegel.

Mit Gleichung 4.4 lassen sich die in den VOC-Prüfkammern bestimmten Radonkonzentrationen in Exhalationsraten umrechnen.

$$ER_{A/m} = c_{Rn} \cdot q_{A/m} \quad (4.4)$$

mit

$ER_{A/m}$ flächen- oder massebezogene Radonexhalationsrate in $\text{Bq}/\text{kg h}$ bzw. $\text{Bq}/\text{m}^2 \text{ h}$

c_{Rn} Radonkonzentration in Bq/m^3

$q_{A/m}$ flächenspezifische bzw. massenspezifische Luftdurchflussrate in $\text{m}^3/(\text{m}^2 \text{ h})$ bzw. $\text{m}^3/(\text{kg h})$

Die errechneten Exhalationsraten sind in

Tabelle 4.3 aufgeführt. Zur Bestimmung der jeweiligen massebezogenen Exhalationsraten nach Kemski & Partner wurde in der Gleichung 3.2 lediglich die Probenoberfläche A durch die Probenmasse m ersetzt.

Tabelle 4.3: Flächen- und massebezogene Radonexhalationsraten. Vergleich zwischen BAM-, Kemski & Partner- sowie BfS-Methode. Die massenspezifischen Exhalationsraten dienen lediglich der Information.

Material	BAM		Kemski & Partner		BfS
	[Bq/m ² h]	[Bq/kg h]	[Bq/m ² h]	[Bq/kg h]	
Lehmstein, Stroh	2,15	0,17	1,61	0,1291	2,83
Lehmstein	1,83	0,09	1,51	0,0704	2,57
Leichtbeton	1,49	0,07	1,29	0,0580	0,73
Kompaktziegel	0,07	0,0017	0,04	0,0010	0,13
Hochlochziegel	0,05	0,0024	0,03	0,0015	0,07
Lehmbauplatte	0,67	0,042	0,68	k. A.	0,55

In Abschnitt 3.2.2.3 wurde bereits ein Vergleich zwischen den ermittelten flächenspezifischen Exhalationsraten von Kemski & Partner und BfS durchgeführt und die bestehenden signifikanten Unterschiede diskutiert. Auch die von der BAM bestimmte Exhalationsrate weicht deutlich von den anderen ab. Sie liegen durchweg zwischen den Werten von Kemski & Partner und BfS. In der folgenden Abbildung 4.2 werden die BAM-Werte mit den Werten von Kemski & Partner und BfS gegenübergestellt.

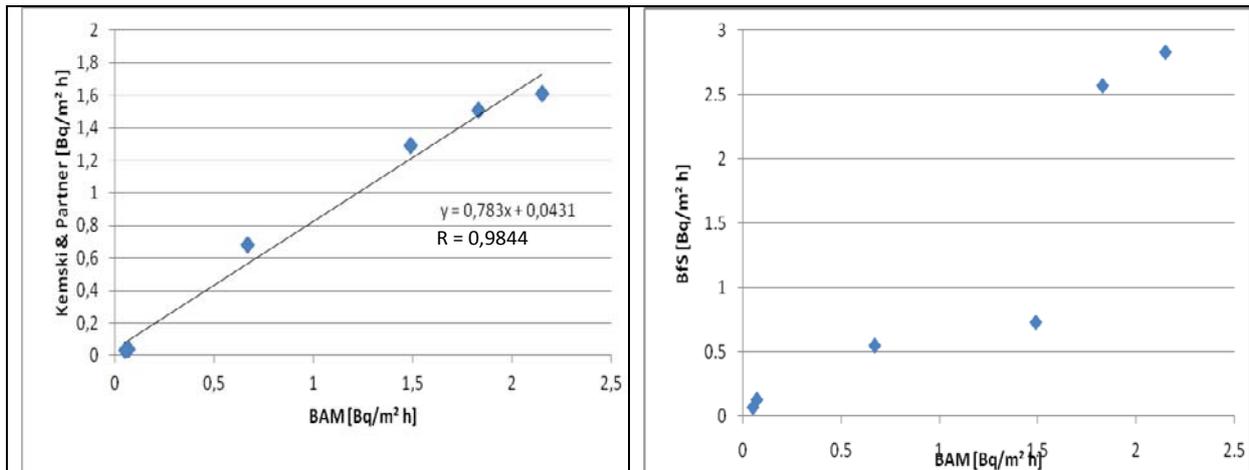


Abbildung 4.2: Vergleich der Radonexhalationsraten der BAM gegen die von Kemski & Partner und BfS

Zwischen den BAM-Werten und den von Kemski & Partner besteht ein linearer Zusammenhang, was auch plausibel ist, da sich beide Bestimmungsmethoden ähneln. Anders verhält es sich beim Vergleich der Messergebnisse BAM/BfS. Aufgrund des Wertes für die flächenspezifische Exhalationsrate von Leichtbeton ist keine eindeutige Korrelation erkennbar.

4.3 Betrachtungen zur Abhängigkeit der Radonexhalationsrate bei unterschiedlichen Beladungen, Luftwechselraten bzw. spezifischen Luftdurchflussraten

Die Zuverlässigkeit einer Prüfmethode ist u. a. dann gegeben, wenn sie robust gegenüber Veränderungen der Messparameter ist. So sollten Messergebnisse in Kammern unterschiedlicher Volumina bei vergleichbaren Bedingungen und unter Einbezug der Beladungsfaktoren L bzw. spezifischen Luftdurchflussraten q als Proportionalitätsfaktoren identisch sein.

Die gemessenen Radonkonzentrationen für Leichtbeton aus den Tabellen 4.1 und 4.2 lassen sich über die errechneten Werte für q und L auftragen (Abbildungen 4.3 und 4.4). Dafür sind die Gleichgewichts- bzw. Maximalkonzentrationen, die sich nach einer mindestens vierwöchigen Messdauer eingestellt haben, herangezogen worden.

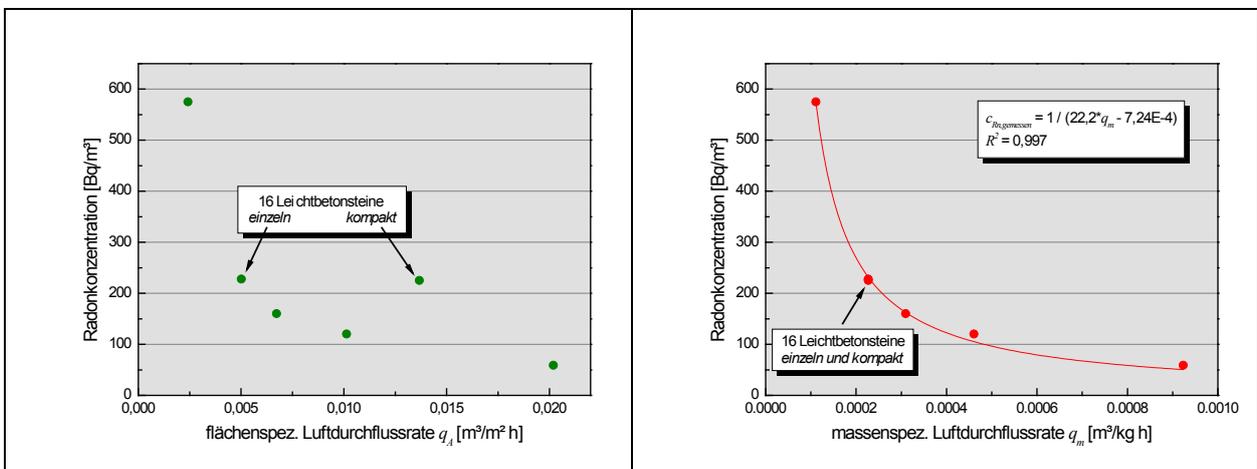


Abbildung 4.3: Auftragung der Werte der Radonkonzentrationsmessungen von Leichtbeton in der 22 L- sowie 1 m^3 -Kammer über die entsprechenden flächen- bzw. massebezogene Luftdurchflussraten unter Einbezug des effektiven Luftwechsels bestehend aus Luftwechsel in den Prüfkammern und der Radon-Zerfallskonstante ($n_{\text{eff}} = 0,013 \text{ h}^{-1}$ in der 22 L-Kammer und $n_{\text{eff}} = 0,0088 \text{ h}^{-1}$ in der 1 m^3 -Kammer)

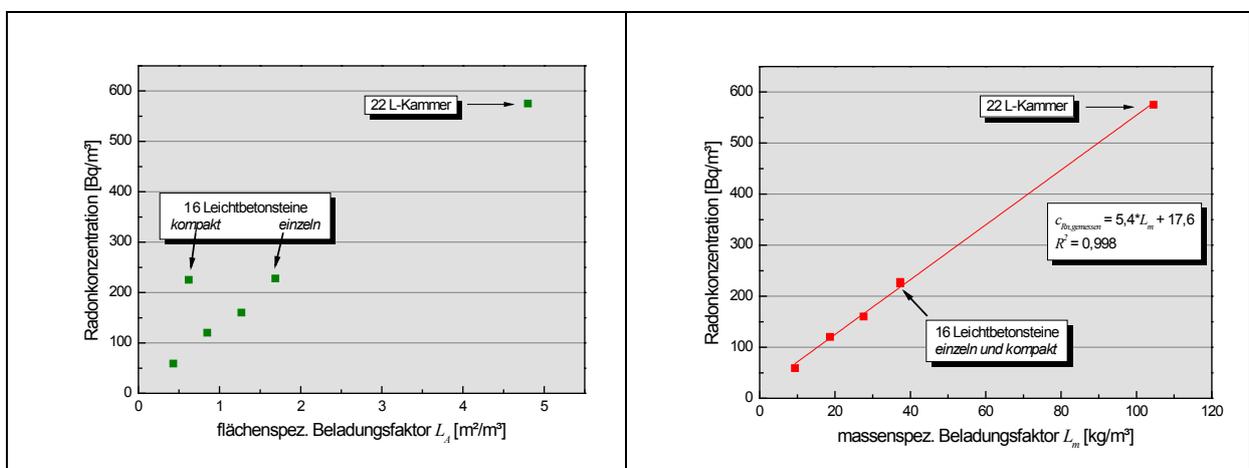


Abbildung 4.4: Auftragung der Werte der Radonkonzentrationsmessungen von Leichtbeton in der 22 L- sowie 1 m³-Kammer über die entsprechenden flächen- bzw. massebezogenen Beladungsfaktoren

In den Diagrammen der Abbildung 4.3 ist ein funktionaler Zusammenhang in Form einer abklingenden Funktion zu erkennen. Jedoch zeigt sich auch hier bei der flächenbezogenen Betrachtung eine Diskrepanz zwischen den Wertepaaren der beiden Messreihen mit den 16 Leichtbetonsteinen in Einzel- und Kompaktanordnung. Anders verhält es sich bei der massenbezogenen Betrachtung, bei der beide Wertepaare übereinander liegen.

Wie erwähnt, wurden die Werte für q unter Einbezug der „effektiven Luftwechselrate“ n_{eff} aus der Summe der gemessenen Luftwechselrate in der Kammer und der Zerfallsrate λ_{Rn} des Radons gebildet. Der Kammerluftwechsel liegt nahe 0 h^{-1} und ist stets kleiner als λ_{Rn} ($0,0076 \text{ h}^{-1}$). Es zeigte sich, dass erst durch Aufsummierung beider Raten ein funktionaler Zusammenhang hergestellt wird. Sie beruhen zwar auf unterschiedlichem Prinzip, jedoch dem gleichen Resultat, der Absenkung der Radonkonzentration. Bei sehr niedrigen Luftwechseln in den Prüfkammern wie hier, darf daher der Radonzerfall nicht vernachlässigt werden, es sei denn, es wird ein Kammerluftwechsel gewählt, der ein großes Vielfaches der Radon-Zerfallskonstante beträgt.

Die Auftragung der Radonkonzentration über den Beladungsfaktor (Abbildung 4.4) zeigt zumindest bei der massenbezogenen Betrachtung einen linearen Zusammenhang zwischen den Exhalationsmessungen in der 1 m³-Kammer und der Kleinprüfkammer. Wegen der identischen Masse und gemessenen Konzentrationen in den beiden Messreihen mit 16 Leichtbetonsteinen (Einzel- und Kompaktanordnung) fallen diese beiden Wertepaare aufeinander.

Dieser lineare Zusammenhang ist bei der flächenbezogenen Betrachtung nicht erkennbar. Aufgrund der Flächenunterschiede der beiden Versuchsanordnungen bei gleichen Exhalationswerten für die 16 Leichtbetonsteine ergeben sich unterschiedliche Werte für L_A .

Dieses Ergebnis kann als Bestätigung dafür gewertet werden, dass der Vorgang der Radonexhalation in der gewählten Versuchsanordnung massenbezogen zu sein scheint. Ferner kann aus der Linearität geschlossen werden, dass die Kammergröße keinen nennenswerten Einfluss auf die Messung hat. Bei Vergleichsmessungen in anderen Prüfkammern bzw. anderen Laboratorien unter den gleichen Bedingungen sollten demnach vergleichbare Ergebnisse erzielt werden können.

Den Werten der Tabelle 4.1 ist zu entnehmen, dass mit einer Abnahme von q_m um den Faktor 3 [von $q_m = 0,00092 \text{ m}^2/(\text{kg h})$ auf $q_m = 0,00031 \text{ m}^2/(\text{kg h})$] ein Konzentrationsanstieg um den Faktor 2,7 (von 59 Bq/m^3 auf 160 Bq/m^3) einhergeht. Ähnliche Resultate werden auch bei anderen Wertekombinationen erzielt. Das zeigt, dass, wie bei den VOC-Emissionsmessungen, eine indirekte Proportionalität zwischen Luftwechselzunahme und daraus resultierender Konzentrationsabnahme vorliegt.

Bei Annahme eines massenbezogenen Exhalationsvorgangs und unter Einbezug des effektiven Luftwechsels ergibt sich also ein funktionaler Zusammenhang zwischen der Radonkonzentration und der massenspezifischen Luftdurchflussrate q_m

(Abbildung 4.3). Die Möglichkeit der mathematischen Bestimmung der Radonkonzentration bei höheren Luftwechselraten, wie sie in realen Räumen auftreten, scheint gegeben und wird im Folgenden erläutert.

4.3.1 Ableitung eines Modells zur Berechnung der Radonexhalationsrate bei realitätsnahen Luftwechselraten

Es konnte gezeigt werden, dass die Messung der Radonkonzentration mit den zur Verfügung stehenden kommerziell erhältlichen Messgeräten erschwert wird, je größer der Luftaustausch und damit die Verringerung der Radonkonzentration in der Prüfkammer ist. Dadurch wird auch eine Materialdifferenzierung erschwert bzw. unmöglich. Eine Möglichkeit zur mathematischen Bestimmung der Radonexhalationsrate unter Realraumbedingungen auf der Grundlage einer Messung unter messtechnisch günstigen Bedingungen (Luftwechsel nahe 0 h^{-1}) soll im Folgenden hergeleitet werden.

Die massenspezifische Exhalationsrate in der Prüfkammer wird nach Gleichung 4.5 und die im Real- bzw. Modellraum gemäß Gleichung 4.6 berechnet.

$$ER_{m,Kammer} = c_{Rn,Kammer} \cdot q_{m,Kammer} = c_{Rn,Kammer} \cdot \frac{n_{Kammer}}{L_{m,Kammer}}, \text{ mit } L_{m,Kammer} = \frac{m}{V_{Kammer}} \quad (4.5)$$

$$ER_{m,Raum} = c_{Rn,Raum} \cdot q_{m,Raum} = c_{Rn,Raum} \cdot \frac{n_{Raum}}{L_{m,Raum}}, \text{ mit } L_{m,Raum} = L_{A,Raum} \cdot \rho \cdot d \quad (4.6)$$

mit

$ER_{m,Kammer}$	massenspezifische Emissionsrate bei Kammermessung in Bq/kg h
$ER_{m,Raum}$	massenspezifische Emissionsrate im Real- bzw. Modellraum in Bq/kg h
$c_{Rn,Kammer}$	Radonkonzentration in der Prüfkammer in Bq/m ³
$c_{Rn,Raum}$	Radonkonzentration im Real- bzw. Modellraum in Bq/m ³
$q_{m,Kammer}$	massenspezifische Luftdurchflussrate in der Prüfkammer in m ³ /kg h
$q_{m,Raum}$	massenspezifische Luftdurchflussrate im Real- bzw. Modellraum in m ³ /kg h
n_{Kammer}	Luftwechselrate in Prüfkammer in h ⁻¹
n_{Raum}	Luftwechselrate im Real- bzw. Modellraum in h ⁻¹
$L_{m,Kammer}$	massenspezifischer Beladungsfaktor in der Prüfkammer in kg/m ³
$L_{m,Raum}$	massenspezifischer Beladungsfaktor im Real- bzw. Modellraum in kg/m ³
$L_{A,Raum}$	flächenspezifischer Beladungsfaktor im Real- bzw. Modellraum in m ² /m ³
m	Gesamtmasse des eingebrachten Prüfguts in kg
ρ	Dichte des Prüfguts in kg/m ³
d	Einbaudicke des Prüfguts im Real- bzw. Modellraum in m
V_{Kammer}	Prüfkammervolumen in m ³

Um von der Prüfkammerkonzentration bei entsprechendem $q_{m,Kammer}$ auf die Real- bzw. Modellraumkonzentration bei entsprechendem $q_{m,Raum}$ zu schließen, werden die Gleichungen 4.5 und 4.6 gleichgesetzt und nach $c_{Rn,Raum}$ umgeformt (Gleichung 4.7).

$$c_{Rn,Raum} = c_{Rn,Kammer} \cdot \frac{n_{Kammer}}{n_{Raum}} \cdot \frac{L_{A,Raum}}{L_{m,Kammer}} \cdot \rho \cdot d \quad (4.7)$$

Für eine künftige Prüfvorschrift zur Bestimmung der Radonexhalationsraten aus Baumaterialien muss eine Vereinbarung über einen Modellraum getroffen werden, auf den die in den Prüfkammern gemessenen Radonkonzentrationen bezogen werden. In diesem Bericht wird keine Festlegung vorgenommen. Für nachfolgende Beispielberechnungen nach dem Extrapolationsmodell wurden die Vorgaben nach AgBB-Schema und RP 112 sowie die Empfehlung in ISO 16000-9 herangezogen. In Tabelle 4.4 sind die entsprechenden Modellraumparameter und in Tabelle 4.5 die für die im Anschluss erläuterten Berechnungen relevanten Materialparameter aufgelistet.

Tabelle 4.4: Parameter für betrachtete Modellräume

Modellraum	AgBB	RP 112	ISO 16000-9
Abmessungen (B x L x H) [m]	3 x 4 x 2,5	4 x 5 x 2,8	2 x 3,5 x 2,5 ^{*)}
Wandfläche A_{Wand} [m ²]	35	50,4	27,5
Fläche Boden + Decke $A_{Boden+Decke}$ [m ²]	24	40	14 ^{*)}
Gesamtfläche A_{ges} [m ²]	59,0	90,4	41,5
Modellraumvolumen V_{Raum} [m ³]	30,0	56,0	17,4
Luftwechselrate n_{Raum} [h ⁻¹]	0,5	0,5 ^{*)}	0,5
flächenspez. Beladungsfaktor $L_{A,Raum}$ [m ² /m ³]	2,0	1,6	2,4

^{*)} angenommen

Tabelle 4.5: Materialparameter

	Lehmstein, Stroh	Lehmstein	Kompaktziegel	Leichtbeton	Hochlochziegel
Masse m_i [kg]	1,308	2,250	4,355	2,332	2,619
Probenvolumen V_i [m ³]	$1,96 \cdot 10^{-3}$	$1,96 \cdot 10^{-3}$	$1,96 \cdot 10^{-3}$	$1,96 \cdot 10^{-3}$	$3,19 \cdot 10^{-3}$ ^{*)}
Dichte ρ_i [kg/m ³]	668	1148	2222	1190	840
massenspez. Beladung $L_{m,Kammer}$ [kg/m ³]	59,5	102,3	198,0	106,0	119,0
Einbaudicke im Real- /Modellraum d_i [m]	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25

^{*)} Auf äußere Abmaße bezogen, aufgrund der integrierten Hohlräume ist das tatsächliche Volumen kleiner.

Beispielhaft wurde dieses Modell auf die in diesem Vorhaben durchgeführten Messungen angewendet. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 4.6 für die Modellräume nach AgBB, RP 112 und ISO 16000-9 aufgelistet.

Tabelle 4.6: Modellraumkonzentrationen $c_{Rn,Raum}$ errechnet aus Prüfkammermesswerten

	AgBB	RP 112	ISO 16000-9
	[Bq/m ³]	[Bq/m ³]	[Bq/m ³]
Lehmstein, Stroh	116,2	95,4	141,0
Lehmstein	99,0	81,3	120,1
Kompaktziegel	3,9	3,2	4,7
Leichtbeton	80,4	66,0	97,5
Hochlochziegel	2,0	1,6	2,4

Für die Berechnung der Werte in Tabelle 4.6 wurden die Maximalkonzentrationen verwendet, die sich nach mindestens vier Wochen in der Kleinprüfkammer eingestellt hatten. Um die Prüfzeit zu verkürzen, besteht die Möglichkeit, nach der Methode von Kemski & Partner (Abschnitt 3.2.2.1) die Prüfung nach einer kürzeren Messzeit abzubrechen und die zu erwartende Maximalkonzentration durch nichtlineare Regression zu berechnen.

Nach den durchgeführten Berechnungen leisten die Lehmmaterialien und der Leichtbeton unter Modellraumbedingungen einen wesentlich größeren Beitrag an der Radonkonzentration im Innenraum als die angestrebten 20 Bq/m³. Dieser Wert wird lediglich vom Kompakt- und Hochlochziegel deutlich unterschritten.

Ferner zeigt dieses Ergebnis, dass die Notwendigkeit einer Prüfung in fast allen Fällen angezeigt ist, ganz im Gegensatz zu der Einschätzung, die man nach Anwendung der RP 112 Screeningmethode erhält (Abschnitt 3.2.1). Bezüglich der Lehmmaterialien hätte man danach von weiter gehenden Prüfungen absehen können.

4.4 Ergebnis der Versiegelungsversuche

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Versiegelungsversuche dargestellt. Die Versiegelung von z. B. Schmalflächen oder Rückseiten wird in VOC-Prüfvorschriften gefordert, um zu gewährleisten, dass Emissionen lediglich von der dem Raum zugewandten Seite erfolgen. Analog sollten die Versuche zur Bestimmung der Radonexhalation gestaltet werden. Zu diesem Zweck wurden verschiedene Abdichtungsmaterialien (Abschnitt 3.1.4) um Prüfkörper gewickelt. Die vollständige Umwicklung (teilweise auch doppelt) sollte darüber Informationen liefern, ob eine Abdichtung in der Weise erreicht werden kann, dass die Radonfreisetzung an den gewünschten Freiflächen erfolgt (Abschnitt 3.5). Die Prüfdauer wurde auf vier Tage festgelegt, gemessen wurde mit dem ATMOS 12 DPX. In der folgenden Tabelle sind die Ergebnisse zusammengestellt.

Tabelle 4.7: Radonkonzentrationen nach einer Messzeit von vier Tagen, die trotz Probenversiegelung mit verschiedenen Materialien festgestellt wurden.

Abdichtungsmaterial	Probenmaterial	Rn-Konzentration (mit Versiegelung) [Bq/m ³]	Rn-Konzentration (ohne Versiegelung) [Bq/m ³]
Aluminiumfolie + Klebeband	Leichtbeton	130	560
Al-kaschierte Polymerfolie + Klebeband	Lehmstein	190	690
Kaltselbstklebende Bitumenbahn mit HDPE-Trägerfolie + Klebeband	Lehmstein	180	690
Al-kaschierte Polymerfolie + Flüssigfolie	Lehmstein	120	690
Kaltselbstklebende Bitumenbahn mit HDPE-Trägerfolie + Flüssigfolie	Lehmstein	180	690

Mit dem Klebeband bzw. der Flüssigfolie wurden die Verpackungsenden abgedichtet. Zur Unterstützung der Fixierung wurden zusätzlich Gummibänder verwendet (Abbildung 3.19).

Die Messergebnisse machen deutlich, dass bei keinem der Versuche Radondichtheit erzielt wurde. Das lässt den Schluss zu, dass mit durchschnittlichem experimentellen Aufwand eine wirksame Abdichtung gegenüber Radon nicht erreicht werden kann. Der Vergleich der Konzentrationsanstiege der verpackten Proben mit den Konzentrationsanstiegen der unverpackten Proben macht deutlich, dass zumindest eine hemmende Wirkung durch die Materialien erzielt wurde. Allerdings nicht einmal die doppelt umgewickelte Aluminiumfolie reichte zur Abdichtung aus. Das wurde auch durch die Messung mit der aluminiumkaschierten Polymerfolie bestätigt.

Eine mögliche Erklärung könnte sein, dass sich das aus dem Baumaterial nach wie vor exhalierende Radon nicht mehr in einem Volumen von mehreren Litern Prüfkammerluft (hier 22 L) verdünnt, sondern nur noch in wenige Milliliter Luftvolumen zwischen Material und Abdichtung (z. B. 2 mL). Dadurch müssten die Radonkonzentrationen um mehrere Größenordnungen (in diesem Beispiel Faktor 10.000) höher sein, wodurch der Konzentrationsgradient zur Umgebung der Folie sehr groß ist und entweder hierdurch und/oder durch kleinste Leckagen größere Radonmengen durch die Abdichtung gelangen.

Aufgrund der Ergebnisse wurde darauf verzichtet, weitere Abdichtungsversuche im Hinblick Flächenversiegelung im Rahmen der Prüfkörpervorbereitung zu unternehmen. Das ist vor allem dem Umstand geschuldet, dass der Grad der Hemmung nicht ermittelt werden konnte.

4.5 Abhängigkeit des Messwertes vom Messort

Aus der Exhalationsmessung der 16 kompakt angeordneten Leichtbetonsteine in der 1 m³-Kammer mit dem um 74 cm nach oben versetzten RADIM 3 A resultiert ein Unterschied zu der Messung mit dem am Boden aufgestellten Messgerät (Abbildung 4.5).

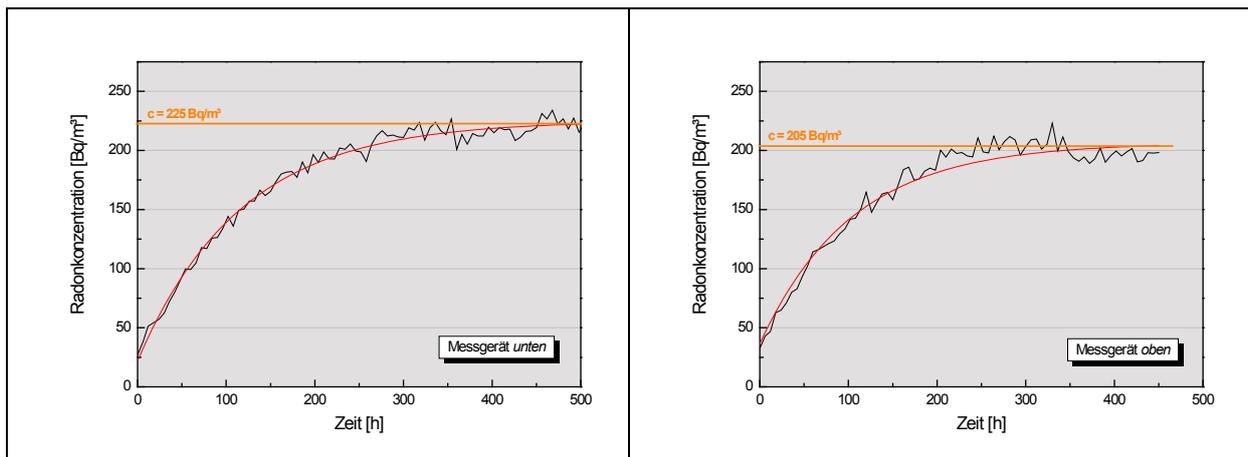


Abbildung 4.5: Vergleich der Verläufe der Radonkonzentrationen bei einer Messung am Kammerboden (links) und im oberen Kammerviertel (rechts)

Die im oberen Kammerbereich gemessene Radonkonzentration lag im Mittel etwa 10 % unter der unten gemessenen. Das bedeutet, dass bei Exhalationsmessungen, abhängig von der Kammergeometrie, unbedingt auf eine aktive Lufthomogenisierung geachtet werden sollte. Bei kleineren Kammern oder Prüfräumen (etwa Fässern oder Modellräume bis 150 L) sollte die Ausbildung eines Radonkonzentrationsgradienten eine untergeordnete Rolle spielen, es sei denn, die Kammergeometrie erfordert einen vertikalen Aufbau der Prüfkörper und der Prüfraum wäre relativ hoch. Dann muss der Messort festgelegt werden (am besten unter den Prüfkörpern) oder aktiv eine Homogenisierung der Prüfraumlufte betrieben werden. Da in diesem Fall die Leckagen aktiv angeströmt werden, erhöht sich der Luftwechsel, wodurch allerdings ein Absinken der Radonkonzentration resultieren würde.

5 Zusammenfassung

Das Forschungsvorhaben hat bestätigt, dass die Messung der Radonexhalation von Bauprodukten in Emissionsmesskammern möglich und praktikabel ist. Verglichen mit herkömmlichen Methoden, die vorwiegend auf der Bestimmung der Emanationsrate mit anschließender Berechnung der Exhalation beruhen, bieten die Prüfkammermessungen eine deutlich realitätsnähere Messmöglichkeit, da räumklimatische Bedingungen, wie Temperatur, relative Luftfeuchtigkeit und bedingt auch der Luftaustausch berücksichtigt werden können.

Die Luftwechselrate ist aus raumlufthygienischer Sicht eine wichtige Einflussgröße. Sie ist je nach Bauweise bzw. Dichtigkeit eines Gebäudes in ihrer Größe variabel und beeinflusst die Konzentration von Luftinhaltsstoffen. Die Messungen in diesem Vorhaben sollten bei definierten Luftwechseln durchgeführt werden. Es stellte sich bei den ersten Messungen jedoch heraus, dass selbst kleine Luftwechsel deutliche Konzentrationsminderungen bewirkten, so dass unter Umständen eine Unterscheidung zum Untergrund nur unzureichend oder gar nicht möglich war. Auf dieser Basis erschien eine Differenzierung von verschiedenen Materialien nicht möglich. Dementsprechend wurden die Messungen unter Bedingungen durchgeführt, die eine Differenzierung erlaubten, den realen Verhältnissen nahe kamen, sich aber hinsichtlich Luftwechsel deutlich von den Realraumbedingungen unterschieden.

Dabei konnte festgestellt werden, dass jede Messkammer, auch wenn sie ohne Zuluft betrieben wird, einen Luftaustausch mit der Umgebung hat. Es konnte gezeigt werden, dass selbst sehr kleine Luftwechsel von $0,24 \text{ d}^{-1}$ eine Verringerung der Konzentration gegenüber der Maximalkonzentration, die sich bei einem Luftwechsel von 0 d^{-1} einstellt, zur Folge haben. Außerdem ist eine mögliche Abhängigkeit vom Luftdruck zu vermuten. Vor diesem Hintergrund erscheint es notwendig, die genaue Luftwechselrate der Prüfkammer im zuluftfreien Betrieb zu kennen oder auf einen definierten, ausreichend kleinen Wert festzulegen.

Der Einfluss des Luftwechsels auf eine Kammermessung kann reduziert werden, je dichter die Kammer ist bzw. je größer das Kammervolumen gewählt wird. In diesem Fall wird bei gleicher Abdichtung eine Absenkung der spezifischen Leckrate erreicht, woraus kleinere Luftwechselraten resultieren. Andererseits hätte ein geringes Prüfraumvolumen den Vorteil höherer Radonkonzentrationen, wodurch die Differenzierung erleichtert wird.

Die Entwicklung einer Prüfvorschrift zur Messung der Radonexhalation in Kleinprüfkammern ist aus wirtschaftlicher Sicht anzustreben, da ein größerer Probendurchsatz möglich wäre. Größere Prüfstücke, insbesondere zu einem Mauerverbund angeordnete Wandbildner, lassen sich nur in größeren Kammern, z. B. einer 1 m^3 -Kammer, messen. Entsprechende Versuche stehen jedoch noch aus.

Eine wichtige zu klärende Fragestellung war die nach der Flächen- oder Massenabhängigkeit des Exhalationsvorgangs. Es konnte anhand der Versuche mit einer verschiedenen Anzahl an Leichtbetonsteinen gezeigt werden, dass eine Vervielfachung der Probenmenge einen Anstieg der Radonkonzentration um nahezu den gleichen Faktor hervorruft. In diesem Fall konnte auch von einer ebensolchen Vergrößerung

der exhalierenden Oberfläche ausgegangen werden. Bei einer Verkleinerung der freien exhalierenden Oberfläche bei gleicher Anzahl an Steinen (kompakter Aufbau ohne Bindemittel), also bei konstanter Masse, konnte beobachtet werden, dass sich die zu messende Konzentration nicht verringert hatte, sondern gleich blieb. Dieses Ergebnis lässt auf einen massenabhängigen Vorgang schließen. Dies wurde durch den linearen Zusammenhang zwischen Radonkonzentration und massenbezogenem Beladungsfaktor L_m bestätigt. Zur Verifizierung dieser Feststellung sollten allerdings weitere Versuche durchgeführt werden. Aufgrund des festgestellten Massenbezugs können ferner Messunempfindlichkeiten der verwendeten Messgeräte auch durch Erhöhung der Kammerbeladung kompensiert werden.

Für eine Definition der Kriterien zur Probenvorbereitung nach dem Vorbild der VOC-Emissionsmessungen erfolgten entsprechende Versuche. Eine wichtige Feststellung konnte bei der Anlieferung aus der Beschaffenheit der Prüfstücke zu Beginn dieses Vorhabens gemacht werden. Die Proben wurden kalt und teils feucht angeliefert. Selbst nach ca. 8 Wochen Klimatisierung stellte sich in der Prüfraumlufte eine relative Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % ein. Vor Beginn von Exhalationsmessungen muss daher für eine ausreichende Konditionierung der Prüfkörper gesorgt werden. Vor der Messung der Radonexhalation sollte deshalb die ausreichende Konditionierung überprüft werden.

Als ungeeignet erwies sich eine Prüfstrategie unter Verwendung von Abdichtungsmaterialien. Sie sollten zur Oberflächenversiegelung verwendet werden, mit dem Ziel, das Prüfstück derart für die Messung vorzubereiten, dass Radon nur aus den Flächen exhalieren kann, die in der Praxis dem Innenraum zugewandt sind. Bei einer Komplettversiegelung der Proben war keines der Verpackungsmaterialien soweit undicht, dass es als geeignetes Abdichtungsmaterial eingesetzt werden konnte.

Interessant war die Feststellung, dass bei Messungen in großvolumigen Prüfkammern auf aktive Homogenisierung der Kammerluft zu achten bzw. der Messort festzulegen ist. Aufgrund seiner großen Atommasse scheint Radon dazu zu neigen, in Richtung Kammerboden einen Konzentrationsgradienten auszubilden. Am Boden sind etwas höhere Konzentrationen festzustellen als im oberen Kammerbereich. Diese Neigung hängt aber stark von der Geometrie der Prüfkammer ab.

Während der durchgeführten Untersuchungen wurde auf eine aktive Homogenisierung mittels in der Kammer integriertem Rührer verzichtet, weil sich herausstellte, dass dies eine Vergrößerung des Luftwechsels bei angestrebten statischen Bedingungen bewirkt.

Ähnliche Resultate wurden bei der Verwendung des Radonmessgerätes ATMOS 12 DPX erzielt. So wurde festgestellt, dass das Gerät Undichtigkeiten aufwies, woraus eine Erhöhung des Luftwechsels resultierte. Die Steigerung des Luftwechsels in der 22 L –Prüfkammer war verbunden mit einer starken Konzentrationsabnahme von nahezu 50 %. Das Messgerät war daher nicht zu Parallelmessungen an verschiedenen Prüfkammern geeignet. Dennoch erscheint gerade die Möglichkeit der Parallelmessung für die Routine effizient zu sein. Messgeräte nach dem Prinzip des ATMOS 12 DPX, die im Bypass an Messkammern angeschlossen werden können, wären für einen solchen Einsatz prädestiniert, wenn sie ausreichend dicht wä-

ren, so dass sie keinen Zusatzluftwechsel erzeugen und nicht die Hintergrundkonzentration der Umgebung mit erfassen. Die Undichtigkeiten sind eher ein generelles Problem bei Geräten dieser Bauart. Eine absolute Dichtheit, wie sie für diese Art der Anwendungen benötigt wird, ist schwer zu realisieren.

5.1 Schlussfolgerungen

Die Ergebnisse, die im Rahmen dieses Forschungsvorhabens erzielt wurden, erschweren eine abschließende Empfehlung für eine konkrete Prüfmethode zur Bestimmung der Radonexhalation aus Bauprodukten. Es wurden prinzipielle Aspekte der Prüfkammermessungen beleuchtet. Auf diesen Ergebnissen kann in weiterführenden Experimenten aufgebaut werden.

Die meisten Untersuchungen wurden nicht wiederholt. Das lag einerseits darin begründet, dass die Untersuchungen lange Laufzeiten und zunächst orientierenden Charakter hatten, andererseits darin, dass technische Probleme der Messgeräte die Arbeiten verzögerten. Wegen der nicht gänzlich abstellbaren Undichtigkeiten am ATMOS 12 DPX, musste auf die passiven Messgeräte RADIM 3 A und RADONSCOUT zurückgegriffen werden. Weil sie bei jeder Messung in die Prüfkammer mit eingestellt werden mussten, konnten parallele bzw. Wiederholungsmessungen in den Versuchsplan nicht eingeordnet werden.

Auf der Grundlage der Erkenntnisse aus dieser Arbeit können für die Entwicklung des angestrebten Prüfverfahrens folgende Schlüsse gezogen werden:

1. **Vergleichende Untersuchungen von Baumaterialien und ihre Differenzierung hinsichtlich Radonexhalationsniveau sind möglich.**
2. **Die Dichtheit des eingesetzten Prüfsystems muss überprüfbar sein.**

Es konnte gezeigt werden, dass Messkammern prinzipiell Undichtigkeiten aufweisen. Diese Leckagen wirken sich weniger stark aus, je größer das Prüfraumvolumen gewählt wird.

Dieses Dichtheitskriterium gilt auch für das eingesetzte Messgerät, es sei denn, die Undichtigkeiten sind unwirksam, z. B. wenn das Messgerät in der Prüfkammer eingesetzt wird.

3. **Vereinbarungen zur Probenvorbereitung müssen getroffen werden.**

Es konnte, wenn auch nur exemplarisch, festgestellt werden, dass der Exhalationsvorgang eher massen- als flächenbezogen erfolgt. Diese Kenntnis wird für eine geeignete Probenvorbereitung vorausgesetzt. Bei einer flächenbezogenen Exhalation müssten Abdichtungsmaßnahmen getroffen werden, wofür geeignete, radonundurchlässige Materialien gefunden werden müssten. Die in diesem Vorhaben verwendeten Materialien sorgten nicht für ausreichende Dichtheit.

Ferner ist durch weitere Versuche abzuklären, in welchem Zustand die Proben zu untersuchen sind. Für die hier durchgeführten Messungen wurden einzelne Steine in die Kammern eingestellt. Das ist im Hinblick auf die Praktikabilität und Wirtschaftlichkeit bei Routineuntersuchungen zweckmäßig, entspricht

aber nicht der Realität, da z. B. Wand bildende Materialien immer im Verbund mit Bindemittel und Oberflächenbeschichtung vorliegen. Mit der Durchführung weiterer Messreihen muss festgestellt werden, welche Unterschiede bei Anwendung unterschiedlicher Prüfmethodiken zu erwarten wären.

Auf ausreichende Klimatisierung der Proben muss geachtet werden. Dazu sollten sie in einem unter definierten Bedingungen klimatisierten Raum eingelagert werden. Die Klimaparameter sind zu überwachen. Eine Empfehlung für eine Konditionierungszeit kann nicht gegeben werden, da sie vom Zustand der Proben zum Zeitpunkt der Anlieferung abhängt. Diese Zeit kann sich unter Umständen verlängern, wenn Prüfstücke aus Schüttgütern unter Einsatz von Wasser hergestellt wurden oder beim Aushärten länger andauernde chemische Prozesse ablaufen.

4. Übertragbarkeit der Messergebnisse auf unterschiedliche Raumvolumina:

Die Prüfkammergröße sollte keinen Einfluss auf das endgültige Prüfergebnis haben. Das ist gegeben, wenn ein Messergebnis auf beliebige Raumvolumina rechnerisch übertragen werden kann. Im Rahmen der VOC-Prüfungen wird das praktiziert, der Emissionsvorgang ist hier weitgehend erforscht. Hinweise auf diese Übertragbarkeit ergeben sich auch aus den in diesem Vorhaben erzielten Ergebnisse. Bei Annahme eines massenbezogenen Exhalationsvorgangs stellte sich ein linearer Zusammenhang zwischen der Radonkonzentration und dem Beladungsfaktor L_m heraus. Die Durchführung von Laborvergleichsuntersuchungen könnte hier weitere Klarheit bringen.

5. Die Übertragung der Messergebnisse auf Realraumbedingungen scheint gegeben. Die Ergebnisse lassen annähernd direkte Proportionalität zwischen Luftwechsel n bzw. spezifischer Luftdurchflussrate q und der Radonkonzentration durch einen funktionalen Zusammenhang erkennen. Das vorgeschlagene Berechnungsmodell lässt es zu, mit leicht zu ermittelnden Größen auf Radonkonzentrationen unter Realraumbedingungen zu schließen. Dabei wird auch der verbaute Zustand des Materials berücksichtigt. Zur Verifizierung sind allerdings noch Korrelationsuntersuchungen notwendig, die Auskunft geben über den Zusammenhang zwischen ermittelten Materialkennwerten und der sich einstellenden Radonkonzentration unter Realraumbedingungen.

6 Vorschlag für ein Prüfverfahren

Aufgrund der im Allgemeinen zu erwartenden niedrigen Radon-Exhalation der Bauprodukte sind die Prüfkammern statisch bei einem definierten Luftwechsel n nahe 0 h^{-1} zu betreiben. Da ein Luftwechsel von $n = 0 \text{ h}^{-1}$ nicht gewährleistet werden kann, muss er mittels Tracergasmethode nach VDI-Richtlinie 4300-Blatt 7 [21] bestimmt werden. Auf Grundlage der bestimmten Luftwechselrate ist eine massenspezifische Beladung $L_{m,Kammer}$ zu wählen, die ähnlich der des Modellraums ist. Die Temperatur und relative Luftfeuchtigkeit in der Kammer sollen analog zu DIN EN ISO 16000-9, AgBB und RP 112 $T = 23 \text{ °C}$ und $r. F. = 50 \%$ betragen.

Die Prüfkörper werden in der Form in die Kammer eingebracht, in der sie später auch zum Einsatz kommen. Eine Flächenabdichtung erfolgt nicht. Alle Flächen sind der Kammerluft zugänglich und gleichmäßig mit Kammerluft zu umspülen. Die mittlere Luftströmungsgeschwindigkeit in der Kammer beträgt $0,1 - 0,3 \text{ m/s}$.

Die Prüfkörper sind vor der Kammerprüfung zu konditionieren, so dass sichergestellt ist, dass bei der Kammerprüfung die geforderte Temperatur und relative Luftfeuchtigkeit eingehalten wird.

Für die Bestimmung der Radonkonzentration sind geeignete und ausreichend empfindliche Messgeräte einzusetzen. Diese sind bevorzugt in der Kammer unterzubringen, es sei denn, es kann gezeigt werden, dass diese bei externer Unterbringung keinen zusätzlichen Luftwechsel in der Kammer erzeugen und keine Beeinflussung durch in der Umgebungsluft vorhandenes Radon zeigen.

Die Umgebungsluft der Kammern muss möglichst geringe Radonkonzentrationen aufweisen, da sonst Radon bei der Beladung in die Kammern eindringen kann und bei kleinen Luftwechseln nur langsam abklingt und die Bestimmung der Radonexhalation des Prüfkörpers stört. Die Radonkonzentration in der Umgebungsluft darf nicht mehr als 50 Bq/m^3 betragen, ansonsten ist durch Spülen mit radonarmer Luft ein Startwert in der Kammer von $\leq 50 \text{ Bq/m}^3$ sicherzustellen.

Die Bestimmung der Radonkonzentration in der Kammer hat im Regelfall über einen Zeitraum von 38 Tagen (10 Halbwertszeiten) zu erfolgen. Nach dieser Zeit ist im Allgemeinen die Radon-Gleichgewichtskonzentration erreicht. Die Radon-Exhalationsrate ER kann jedoch schon zu einem früheren Zeitpunkt aus der Steigung der Radonkonzentrations-Messkurve durch nichtlineare Regression ermittelt werden (Abschnitt 3.2.2.1). Ist die Maximalkonzentration bekannt, kann mit dem vorgeschlagenen Berechnungsmodell (Abschnitt 4.3.1) auf die Radonkonzentration bzw. Exhalationsrate unter Modellraumbedingungen geschlossen werden.

7 Literatur

1. Kemski, J. und Klingel, R., *Erarbeitung von Bewertungskriterien zur Identifizierung von Baustoffgruppen mit erhöhter Radioaktivität und Radonexhalation.* - unveröffentl. Bericht zu DIBt-Forschungsvorhaben, 2008. 54 S.
2. Deutsches Institut für Normung (DIN), *Innenraumluchtverunreinigungen - Teil 6: Bestimmung von VOC in der Innenraumlucht und in Prüfkammern, Probenahme auf TENAX TA[®], thermische Desorption und Gaschromatographie mit MS/FID (ISO 16000-6:2004)*, 2004. Beuth, Berlin
3. Deutsches Institut für Normung (DIN), *Innenraumluchtverunreinigungen - Teil 3: Messen von Formaldehyd und anderen Carbonylverbindungen - Probenahme mit einer Pumpe (ISO 16000-3:2001)*, 2002. Beuth, Berlin
4. Deutsches Institut für Normung (DIN), *Innenraumluchtverunreinigungen - Teil 9: Bestimmung der Emission von flüchtigen organischen Verbindungen aus Bauprodukten und Einrichtungsgegenständen - Emissionsprüfkammer-Verfahren (ISO 16000-9:2006)*, 2006. Beuth, Berlin
5. World Health Organization *WHO Handbook on indoor radon: A public health perspective*, 2009. Genf.
6. European Commission - Joint Research Centre - Environment Institute, *ECA Report No 15 - Radon in indoor air*, 1995. Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg
7. Kemski, J., Klingel, R. und Stegemann, R., *Validierung der regionalen Verteilung der Radonkonzentration in Häusern mittels Radonmessungen unter Berücksichtigung der Bauweise (Bericht zum Forschungsvorhaben St. S ch. 4271)*, in : Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz. 2004, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU). 79 S.
8. *Gesetz über das Inverkehrbringen von und den freien Warenverkehr mit Bauprodukten zur Umsetzung der Richtlinie 89/106/EWG des Rates vom 21. Dezember 1988 zur Angleichung der Rechts- und Verwaltungsvorschriften der Mitgliedstaaten über Bauprodukte und anderer Rechtsakte der Europäischen Gemeinschaften (Bauproduktengesetz - BauPG)*, in: BGBl., Jg. 1998, Teil I, Nr. 25: 812.
9. *Radiation Protection 112 - Radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials*, 1999, European Commission. 16 S.
10. http://ec.europa.eu/energy/nuclear/radiation_protection/doc/com_2011_0593.pdf
EURATOM. Draft Euratom Basic Safety Standards Directive, 2011
11. Jung, T h., Vortrag im Rahmen des 6. Radonfachgesprächs vom 11. 05.-12.05.2011, Bundesamt für Strahlenschutz (BfS)
12. *Radonexhalation im Zulassungsverfahren.* Empfehlung des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS), Niederschrift der 4. Sitzung der DIBt-Projektgruppe "Radioaktivität/Radonexhalation" v. 08.07.2009, Anlage 5.
13. Kemski, J. und Klingel, R., *Studie zu Radonexhalationsmessungen und Bewertung ihrer Anwendbarkeit als Standardprüfverfahren für Baustoffe und Bauprodukte, die in Bezug auf die Radonexhalation als relevant anzusehen sind.* - unveröffentl. Bericht zu DIBt-Forschungsvorhaben, 2009. 27 S.
14. Keller, G., Hoffmann, B. and Feigenspan, T., *Radon permeability and radon exhalation of building materials.* The Science of The Total Environment, 2001. **272** (1-3): p. 85-89.

15. Hoffmann, B., *Methoden zur Bestimmung der Radonexhalation*. Beratungsunterlagen zur 4. Sitzung der DIBt-Projektgruppe "Radioaktivität/Radonexhalation" v. 23.12.2008, Anlage 1.
16. Samuelsson, C. und Pettersson, H., *Exhalation of 222-Rn from porous materials*. Radiation Protection Dosimetry, 1984. **7** (1-4): p. 95-100.
17. Jann, O., Köppke, J., Lehmann, R. und Schneider, U., *Messungen der Radonexhalation aus Baustoffen unter Modellklimabedingungen*. Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft, 2003. **63** (1/2 - Jan./Febr.): p. 49-52.
18. Nederlands Normalisatie-instituut (NEN), *Radioactivity measurement - Determination method of the rate of the radon exhalation of dense building materials*, 2001. NEN, Delft
19. Deutsches Institut für Normung (DIN), *Innenraumluftverunreinigungen - Teil 11: Bestimmung der Emission von flüchtigen organischen Verbindungen aus Bauprodukten und Einrichtungsgegenständen - Probenahme, Lagerung der Proben und Vorbereitung der Prüfstücke ISO 16000-11:2006*; Deutsche Fassung EN ISO 16000-11:2006, 2006. Beuth, Berlin
20. Gehrke, K. Hoffmann, B., Schkade, U., Schmidt, V. und Wichterey, K., *Natürliche Radioaktivität in Baumaterialien und die daraus resultierende Strahlenexposition - unveröff. Bericht*, 2008, Bundesamt für Strahlenschutz (BfS). 21 S.
21. Verein Deutscher Ingenieure (VDI), *Messen von Innenraumluftverunreinigungen - Bestimmung der Luftwechselzahl in Innenräumen (VDI 4300-Blatt 7)*, 2001. Beuth, Berlin