

Entwicklung einer Low-Level-Radon-Referenzkammer

Von der Fakultät für Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover
zur Erlangung des Grades

Doktorin der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation von

Dipl.-Phys. Diana Linzmaier

geboren am 22.11.1983 in Lutherstadt Eisleben

2013

Diese Dissertation wurde von mir selbständig verfasst. Die benutzten Hilfsmittel und Quellen sowie die zu Hilfsleistungen herangezogenen Institutionen wurden vollständig angegeben.

Diana Linzmaier, 4. Januar 2013

Referent: Prof. Dr. Rolf Michel
Korreferent: Prof. Dr. Clemens Walther
Dr. Dirk Arnold
Tag der Promotion: 7. Dezember 2012

Kurzfassung

Das natürlich auftretende, radioaktive Edelgas Radon-222 ist weltweit in unterschiedlichen Aktivitätskonzentrationen in der Luft vorhanden. Beim Zerfall von Radon-222 bilden sich Radon-Folgeprodukte, die elektrisch geladen sind und sich an die in der Luft befindlichen Aerosolen anlagern. Zusammen mit den Aerosolen wird das Radon vom Menschen ein- und ausgeatmet. Während das Radon nahezu vollständig ausgeatmet wird, verbleiben bei einem Atemzyklus ca. 20 % der inhalierten Aerosole in der Lunge. In Folge der ionisierenden Strahlung kann dort in einer Kette von Ereignissen Lungenkrebs entstehen. Somit stellen Radon und dessen Folgeprodukte nach heutigen Erkenntnissen die zweithäufigste Ursache für Lungenkrebs dar. An Arbeitsplätzen und in Wohnräumen werden deshalb Messungen der Radonaktivitätskonzentration durchgeführt, um die Strahlenexposition des Menschen zu ermitteln. Alle zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration eingesetzten Messgeräte sind aber nur oberhalb von 1000 Bq/m^3 kalibriert, obwohl der Mittelwert nach derzeitigen Erhebungen in Deutschland bei 50 Bq/m^3 liegt.

Zur Kalibrierung von Messgeräten im Bereich unterhalb von 1000 Bq/m^3 über einen langen Zeitraum wird in dieser Arbeit die Erzeugung einer stabilen Referenzatmosphäre vorgestellt. Durch eine Langzeitkalibrierung ($t > 5$ Tage) der Messgeräte ergeben sich wesentlich kleinere Unsicherheiten für den Kalibrierfaktor. Für das Kalibrierverfahren wurde eine sogenannte Low-Level-Radon Referenzkammer aufgebaut und in Betrieb genommen. Die Erzeugung einer stabilen Referenzatmosphäre erfolgt mittels Emanationsquellen, die aus einem Radium-226-Aktivitätsnormal bestehen. Auf Basis der γ -Spektrometrie wird für alle Emanationsquellen ein effektiver Emanationskoeffizient bestimmt. Die Rückführbarkeit der Aktivitätskonzentration im Referenzvolumen erfolgt bei diesem Verfahren über die Aktivität des Radium-226, den Emanationskoeffizienten und das Volumen. Mit den hergestellten Emanationsquellen wurden stabile Referenzatmosphären im Bereich von 150 Bq/m^3 bis 1900 Bq/m^3 erreicht.

Zur Darstellung, Bewahrung und Weitergabe der Einheit Bq/m^3 , wurde ein großvolumiges Transfornormal entwickelt. Das Transfornormal besteht aus einer Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer sowie der dafür entwickelten Messelektronik und Auswertesoftware. Mit der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer werden α -Teilchen in Abhängigkeit von der Energie detektiert. Aus den gemessenen α -Energiespektren wird eine Aktivitätskonzentration bestimmt. Die Kalibrierung der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer erfolgt mit einem Primärnormal. Die Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer steht damit als Sekundärnormal zur Verfügung und wird zur Kalibrierung von kommerziellen Messgeräten eingesetzt. Bei einer ersten Kalibrierung eines kommerziellen Messgeräts wurde für den Kalibrierfaktor eine relative Unsicherheit von 3,5 % für $k = 2$ bei 200 Bq/m^3 erzielt.

Schlagworte: Radon, Metrologie, Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer

Abstract

The naturally occurring, radioactive noble gas radon-222 exists worldwide in different activity concentrations in the air. During the decay of radon-222, decay products are generated which are electrically charged and attach to aerosols in the air. Together with the aerosols, the radon is inhaled and exhaled by humans. While the radon is nearly completely exhaled, ca. 20 % of the inhaled aerosols remain in the lungs in one breath cycle. Due to ionizing radiation, in a chain of events, lung cancer might occur. Consequently, radon and its decay products are according to the current findings the second leading cause of lung cancer. At the workplace and in the home measurements of radon activity concentration are performed to determine the radiation exposition of humans. All measurement devices for the determination of radon activity concentration are calibrated above 1000 Bq/m³, even though the mean value of the present investigation in Germany shows only 50 Bq/m³.

For the calibration of measurement devices in the range below 1000 Bq/m³ over a long time period, the generation of a stable reference atmosphere is presented in this work. Due to a long term calibration ($t > 5$ days) of the measurement devices, smaller uncertainties result for the calibration factor. For the calibration procedure, a so-called low-level radon reference chamber was set up and started operation. The generation of a stable reference atmosphere is effected by means of emanation sources which consist of a radium-226 activity standard. On the basis of γ -spectrometry, the effective emanation coefficient of the emanation sources is determined. The traceability of the activity concentration in the reference volume is realized via the activity of the radium-226, the emanation coefficient and the volume. With the emanation sources produced, stable reference atmospheres within the range of 150 Bq/m³ to 1900 Bq/m³ are achieved.

For the realization, maintenance and dissemination of the unit Bq/m³, a large volume transfer standard was developed. The transfer standard consists of a multiwire impulse ionisation chamber as well as the respective developed electronic measuring equipment and the corresponding software. With the multiwire impulse ionisation chamber, α -particles in dependency of the energy are detected. Out of the measured α -energy spectra an activity concentration is determined. The calibration of the multiwire impulse ionisation chamber is performed via a primary standard. The multiwire impulse ionisation chamber is now available as a secondary standard and is used for the calibration of commercial measurement devices. At one of the first calibrations of a commercial device a relative uncertainty of 3.5 % for $k = 2$ for the calibration factor at 200 Bq/m³ has been achieved.

Keywords: radon, metrology, multiwire impulse ionisation chamber

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	3
2.1	PTB, Metrologie und Radon-Messtechnik	3
2.2	Radon	4
3	Darstellung der Einheit	7
3.1	Die Low-Level-Radon-Referenzkammer (LL-RRK)	7
3.1.1	Aufbau der LL-RRK	7
3.2	Darstellung einer Referenzatmosphäre mit einem Radon-Aktivitätsnormal . .	9
3.3	Darstellung der Referenzatmosphäre mittels einer Emanationsquelle	11
3.3.1	Aufbau der Emanationsquelle	12
3.3.2	Bestimmung des Emanationskoeffizienten	12
3.3.3	Übersicht der Emanationsquellen	21
3.4	Vergleich der primären Verfahren	24
4	Darstellung und Weitergabe: Metrologie des Radons	27
4.1	Transfornormal	27
4.1.1	Aufbau der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer (VIK)	27
4.1.2	Aufbau des Vorverstärkers	30
4.1.3	Mechanische Schwingungen und akustische Anregungen der VIK . .	34
4.1.4	Messwertaufnahme	39
4.1.5	Totzeitkorrektur	46
4.1.6	Zusammenfassung der Datenaufzeichnung	48
4.2	Messung der Radon-Aktivitätskonzentration mit der VIK	50
4.2.1	Erzeugung und Auswertung von α -Spektren	50
5	Kalibrierung der VIK	59
5.1	Kalibrierung der VIK	59
5.1.1	Kalibrierung der VIK mit einem Primärnormal	59
5.1.2	Kalibrierung mit einem Sekundärnormal	64
6	Zusammenfassung und Ausblick	67
7	Danksagung	71

Literaturverzeichnis	73
A Anhang	79
A.1 Emanationsquellen	79
A.2 Platinenlayout	81
A.3 Vorverstärker	82
A.4 Messung der Folgeprodukte	84
A.5 Akustische Abschirmung der VIKK	85
A.6 Programm zur Messdatenaufzeichnung	87
Lebenslauf	91
Abbildungsverzeichnis	93
Tabellenverzeichnis	95

Kapitel 1

Einleitung

Das Edelgas Radon ist in der Luft weltweit in unterschiedlichen Aktivitätskonzentrationen vorhanden. Die Aktivitätskonzentration c ist der Quotient aus der Aktivität A eines radioaktiven Stoffes und dem Volumen V und hat die Einheit Bq/m^3 . Sie beschreibt die radioaktiven Zerfälle pro Sekunde in einem definierten Volumen. Beim Zerfall von Radon-222 bilden sich Radon-Folgeprodukte, die elektrisch geladen sind. Diese lagern sich an die in der Luft befindlichen Staubteilchen (Aerosole) an und gelangen über die Atmung in die Lunge des Menschen. Dort verbleiben etwa 20 % der inhalierten Aerosole, so dass der Zerfall der Radon-Folgeprodukte unter Aussendung von α -Teilchen zu einer Schädigung des Lungengewebes führen kann. Als Folge der ionisierenden Strahlung können in der DNA der Lungenzellen Einzel- oder Doppelstrangbrüche hervorgerufen werden. In einer Kette von Ereignissen können diese Zellschäden letztendlich zu Lungenkrebs führen [1]. Studien zeigen, dass das Lungenkrebsrisiko proportional mit der Radonaktivitätskonzentration ansteigt [2]. Für lebenslange Nichtraucher ergibt sich eine Erhöhung des Lungenkrebsrisikos pro 100 Bq/m^3 Radonaktivitätskonzentration um 10 %. In der europäischen Pooling-Studie zum Lungenkrebsrisiko durch Radon in Wohnung finden sich dazu genauere Daten und Ergebnisse für unterschiedliche Bereiche der Radonaktivitätskonzentration [3].

Um die Strahlenexposition des Menschen zu ermitteln, werden in Wohnräumen und an Arbeitsplätzen Messungen der Radonaktivitätskonzentration durchgeführt [4], denn Radon verursacht den Hauptteil der natürlichen Strahlenexposition. Die zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration eingesetzten Geräte sind bisher nur in einem Bereich oberhalb von 1000 Bq/m^3 rückführbar kalibriert, weil für niedrige Aktivitätskonzentrationen die Unsicherheit der kommerziellen Messsysteme bei einer Kalibrierung über 24 h zu groß ist. Rückführbar kalibriert bedeutet, dass die Messgrößen auf nationale Normale zurückgeführt werden.

Der arithmetische Mittelwert für die Radonaktivitätskonzentration in Häusern liegt beim Stand der derzeitigen Erhebungen in Deutschland bei 50 Bq/m^3 [5]. Somit wird mit den vorhandenen Messgeräten zumeist in einem Messbereich gemessen, für den keine rückführbare Kalibrierung vorliegt. Um diese metrologische Lücke zu schließen, müssen stabile Radon-Referenzatmosphären im Bereich unterhalb von 1000 Bq/m^3 erzeugt werden, in denen Langzeitkalibrierungen ($t \geq 5$ Tage) möglich sind. Zur Weitergabe der Einheit an andere nationale

und internationale Kalibrierlabore wird ein großvolumiger Detektor benötigt, um auch bei geringen Aktivitätskonzentrationen die Einheit mit kleinen Unsicherheiten darzustellen.

Beide Aufgaben wurden im Rahmen dieser Arbeit erfolgreich bearbeitet. So steht jetzt der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) mit der Low-Level-Radon-Referenzkammer eine Kalibriereinrichtung zur Verfügung, die es ermöglicht, das Leistungsangebot um eine Größenordnung zu erweitern. Weiterhin besteht seit 2011 mit dem Bundesamt für Strahlenschutz eine Verwaltungsvereinbarung für den Bau eines großvolumigen Detektors. Damit ist auch die Weitergabe der Einheit sichergestellt.

In Kapitel zwei dieser Arbeit werden die PTB und die Arbeitsgruppe *Radon-Messtechnik* vorgestellt, sowie die Eigenschaften des Radons einleitend erläutert.

Kapitel drei beschreibt den Aufbau der Low-Level-Radon-Referenzkammer und die Darstellung einer Referenzatmosphäre mittels eines Radon-Aktivitätsnormals und einer Emanationsquelle. Abschließend werden beide primären Verfahren miteinander verglichen.

In Kapitel vier wird ein Überblick über den Aufbau des Transfornormal mit der Messelektronik und den dafür verwendeten Auswertelgorithmen zur Weitergabe der Einheit gegeben. Ferner wird die Auswertung der erzeugten α -Spektren dargestellt.

In Kapitel fünf wird die Kalibrierung des Transfornormal mit einem Primärnormal und die Kalibrierung mit einem Sekundärnormal vorgestellt.

Kapitel sechs fasst die Ergebnisse der Arbeit zusammen.

Langfristig sollen die neu entwickelten metrologischen Verfahren dieser Arbeit in die Normenreihe IEC 61577 und in den ICRU-Report „Measurement and Reporting of Radon Exposures“ einfließen, um auch international zu einer Verbesserung der Radon-Metrologie beizutragen. Denn: Die Qualität von Radonmessungen ist grundlegend für jede epidemiologische Studie über den Zusammenhang von Radon und Lungenkrebs.

Kapitel 2

Grundlagen

2.1 PTB, Metrologie und Radon-Messtechnik

Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) ist „das nationale Metrologie-Institut Deutschlands mit wissenschaftlich-technischen Dienstleistungsaufgaben“ [6]. Der Begriff Metrologie bezeichnet die Wissenschaft vom Messen und ihre Anwendung, sowie die Rückführung der Messwerte auf das SI-System über nationale Normale und die Bestimmung der Messwerte mit Unsicherheitsbetrachtung. In der PTB wird Grundlagenforschung und Entwicklung im Bereich der Metrologie betrieben. Zu den Aufgaben gehören die „Bestimmung der Fundamental- und Naturkonstanten, die Darstellung, Bewahrung und Weitergabe der SI-Basiseinheiten sowie Dienstleistungen und Messtechnik für den gesetzlich geregelten Bereich und die Industrie“ [7]. „Die PTB misst mit höchster Genauigkeit und Zuverlässigkeit und steht für den Fortschritt in der Messtechnik für Gesellschaft, Wirtschaft und Wissenschaft“ [8]. Sie ist dem Gesetz nach verpflichtet die gesetzlichen Einheiten darzustellen, zu bewahren und weiterzugeben [9] und arbeitet nach der DIN EN ISO/IEC 17025 [10], die die Anforderungen beschreibt, die Prüf- und Kalibrierlaboratorien erfüllen müssen. Die PTB gliedert sich in neun Fachabteilungen und eine Verwaltung, in denen es ca. 60 Fachbereiche und Referate gibt. Die kleinste fachliche Einheit in den Fachbereichen ist die Arbeitsgruppe.

Die Arbeitsgruppe 6.13 *Radon-Messtechnik* der PTB beschäftigt sich mit der Metrologie des Radons, sowie mit der Kalibrierung von Radon-220- und Radon-222-Messsystemen und zugehörigen Folgeprodukt-Messsystemen. In der Arbeitsgruppe wird unter anderem nach der IEC-Norm 61577 [11], [12], [13] eine Radonnormal-Kammer (RNK) mit einem Volumen von 21 m³ betrieben [14], in der Radon und dessen Folgeprodukte unter realistischen Klimabedingungen zur Verfügung gestellt werden, um aktive und passive Radon- und Radon-Folgeproduktmessgeräte zu kalibrieren [15]. Für die Radon-Messungen wird ein auf ein nationales Normal rückgeführter Messwert mit Angabe der zugeordneten Messunsicherheit bestimmt. Die Messunsicherheit resultiert aus der Unsicherheit der Kalibrierung und der Messung selbst und liefert eine international einheitliche Basis zur Bewertung von Messungen. Bei einer Kalibrierung mit einem Primärnormal, auch primäres Verfahren genannt, erfolgt

die Darstellung der Aktivitätskonzentration c mittels einer Referenzatmosphäre. Die Kalibrierung mit einem Sekundärnormal erfolgt über die Darstellung der Aktivitätskonzentration c mittels eines Referenzmesssystems. Sowohl bei einer primären Kalibrierung als auch bei einer sekundären Kalibrierung wird das Messgerät zu einem Sekundärnormal und kann als Normal an einem nationalen Metrologie-Institut (NMI) oder Strahlenschutzinstitut eingesetzt werden.

2.2 Radon

Radon ist ein natürlich auftretendes, radioaktives Edelgas, welches unsichtbar, geruchs- und geschmacklos ist. In der Natur kommt es in den Isotopen Radon-219, Radon-220 und Radon-222 vor. Das primordiale Nuklid Uran-238 und dessen Folgeprodukt Radium-226 ist seit Entstehung der Erde in unterschiedlichen Konzentrationen in natürlichen Gesteinen enthalten. Im Verlauf der natürlichen Zerfallsreihe entstehen über α - und β -Zerfälle zahlreiche Schwermetalle – mit Ausnahme des Edelgases Radon. Radon-222 ist das Radon-Isotop mit der im Allgemeinen höchsten Aktivitätskonzentration in der Luft. Es diffundiert aus Porenräumen der verschiedenen Gesteinsarten und aus Baustoffen an die Oberfläche und geht in die Luft über. Dort ist es in unterschiedlichen Konzentrationen vorhanden [16]. Rn-222 hat eine Halbwertszeit von 3,82 Tagen und zerfällt unter der Aussendung eines α -Teilchens zu Po-218. Weitere Folgeprodukte bis hin zum Pb-210 bilden sich innerhalb einiger Minuten, wie in der Abbildung 2.1 dargestellt. Die Folgeprodukte sind durch den radioaktiven Zerfall elektrisch geladen und lagern sich zu einem großen Teil an die in der Luft vorhandenen Aerosole an. Diese Aerosole werden zusammen mit dem Edelgas Radon eingeatmet. Während das Radon bei einem Atemzyklus zu 100 % ausgeatmet wird, verbleiben im Mittel 20 % der Aerosole in der Lunge [17]. Dort zerfallen die kurzlebigen Radon-Folgeprodukte und können zur Schädigung des Lungengewebes führen. Nach heutigen Erkenntnissen stellt das natürlich auftretende Radon nach dem Rauchen die zweithäufigste Ursache für Lungenkrebs dar.

Die gesamte mittlere Strahlenexposition für einen Menschen in Deutschland beträgt 4,2 mSv im Jahr [18]. Wie in Abbildung 2.2 aufgeführt, setzt sich diese aus natürlicher und künstlicher ionisierender Strahlung zusammen. Davon entfallen im Mittel 48 % auf die Medizin, direkt gefolgt von 27 % für Radon und Radon-Folgeprodukte. Durch die Inhalation von Radon und dessen Folgeprodukten ergibt sich ein Dosisbeitrag für die Lunge. Um aus den gemessenen Werten der Radonaktivitätskonzentration in Luft eine Lungendosis zu bestimmen, werden Dosiskonversionsfaktoren eingesetzt. Diese Faktoren zeigen in verschiedenen Literaturen jedoch große Variationen. Im Report der ICRP [5] wird von einer jährlichen effektiven Dosis von 1,72 mSv bei einer Radonexposition von 100 Bq/m^3 auf Grund epidemiologischer Studien ausgegangen. Wird der Ansatz der physikalischen Dosimetrie verwendet, so ergibt sich bei 100 Bq/m^3 eine effektive Dosis von 6 mSv [19] bei einer Aufenthaltszeit von 7000 h in Innenräumen. Nach dem Report UNSCEAR 2000 [20] ergibt sich eine jährliche effektive Dosis in Innenräumen bei einer Aktivitätskonzentration von 100 Bq/m^3 von 2,52 mSv. In

einer aktuellen Veröffentlichung wird sogar aus den vorläufigen Daten bei einer Radonexposition von 300 Bq/m^3 eine jährliche effektive Dosis von 18 mSv abgeschätzt [21]. Laut Strahlenschutzverordnung [22] (§95, Absatz 13) ergibt sich eine effektive Dosis von 1 mSv bei einer Radonexposition von $0,32 \text{ MBq h/m}^3$. Dies verdeutlicht, dass eine abschließende einheitliche wissenschaftliche Klärung des Zusammenhangs von Radonexposition zu effektiver Dosis noch aussteht.

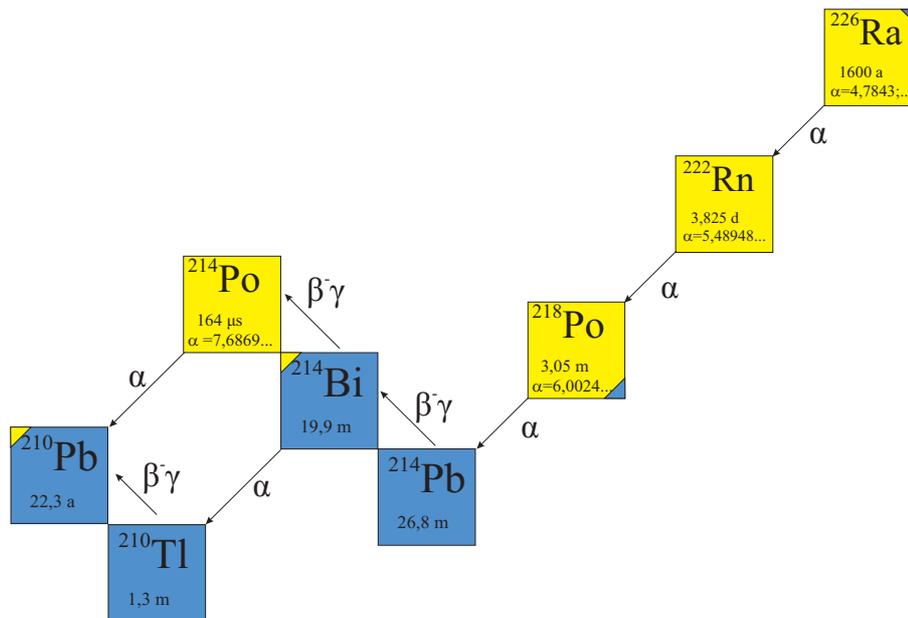


Abbildung 2.1: Auszug aus der Karlsruher Nuklidkarte [23] für die Zerfallsreihe von Radium-226. In gelb dargestellt sind die Isotope, die dem α -Zerfall folgen, blau sind die, denen ein β^- -Zerfall folgt.

Durch die moderne, energiesparende Bauweise mit Isolierung und Wärmedämmung wird der Luftaustausch zwischen der Luft im Gebäude und der Umgebung deutlich reduziert. Gelangt Radon über das Erdreich durch das Fundament in ein Haus, so kann es sich auch in der Gebäudeluft anreichern. In den Häusern baut sich durch einen geringeren Luftaustausch eine höhere Radonkonzentration auf. Es finden sich in Gebäuden Radonwerte, die im Vergleich zur mittleren Konzentration der Außenluft mit 10 Bq/m^3 um das 100 bis 1000-fache höher sind. In Abhängigkeit von der Gesteinsart zeigen die Messungen der Radonaktivitätskonzentration für die Bodenluft in Deutschland starke Schwankungen. In Gebieten mit einer hohen Radonaktivitätskonzentration in der Bodenluft ist die Wahrscheinlichkeit in Gebäuden hohe Radonaktivitätskonzentrationen zu finden am größten. Um die Bevölkerung zu schützen, existieren für Gebäudeneubauten Empfehlungen der World Health Organization von 2009 [24], die vorsehen, dass die Radonaktivitätskonzentration im Gebäude dauerhaft 100 Bq/m^3 nicht überschreiten soll. Wissenschaftliche Studien zeigen zudem, dass mit an die Bedingungen angepassten Lüftungssystemen die Aktivitätskonzentration dauerhaft verringert wird.

Die immer vorhandene Radonaktivitätskonzentration führt auch bei sehr empfindlichen Messungen, wie sie zum Beispiel im Untergrundlabor Gran Sasso (Italien) durchgeführt werden, zu einer Erhöhung des Untergrunds [25]. Deshalb werden um die Detektoren spezielle Abschirmungen montiert, die mit Stickstoff geflutet werden, um die Radonaktivitätskonzentration innerhalb der Abschirmung zu verringern [26]. Durch ein zusätzlich eingebautes Lüftungssystem konnte in der Halle B des Gran Sasso Untergrundlabors eine mittlere Radonaktivitätskonzentration in der Luft von 20 Bq/m^3 erreicht werden [27], während ohne Lüftungssystem im Mittel 150 Bq/m^3 gemessen wurden. Radon ist also neben seiner bedeutenden Rolle im Strahlenschutz auch eine relevante messtechnische Herausforderung in den empfindlichen Experimenten der Grundlagenforschung, der Untergrundlabors und den modernen Sicherheitskonzepten, wie sie zum Beispiel bei der United States Environmental Protection Agency Anwendung finden [28].

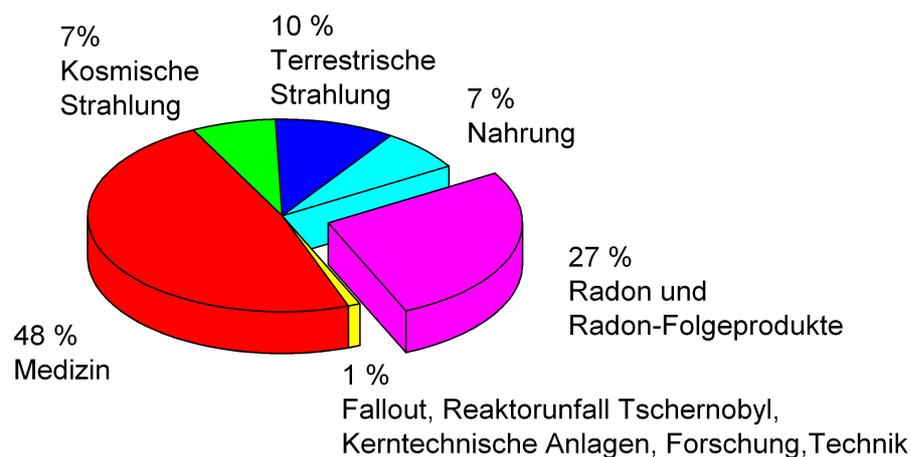


Abbildung 2.2: Die jährliche Strahlenexposition des Menschen beträgt im Mittel $4,2 \text{ mSv}$ und setzt sich zusammen aus natürlicher und künstlicher ionisierender Strahlung [18].

Kapitel 3

Darstellung der Einheit

3.1 Die Low-Level-Radon-Referenzkammer (LL-RRK)

Um Messgeräte bei einer Radonaktivitätskonzentration unterhalb von 1000 Bq/m^3 rückführbar zu kalibrieren, wurde an der PTB eine Low-Level-Radon-Referenzkammer (abgekürzt LL-RRK) aufgebaut. Die LL-RRK besteht aus einem rückgeführten Volumen zur Erzeugung der Referenzatmosphäre, einer Einrichtung zur Überführung definierter Aktivitäten und einem hochsensitiven Transfer- beziehungsweise Sekundärnormal zur Weitergabe und Bewahrung der Einheit.

3.1.1 Aufbau der LL-RRK

In Abbildung 3.1 ist der Aufbau der LL-RRK schematisch dargestellt. Das radondichte Volumen zur Erzeugung der Referenzatmosphäre besteht aus einer Standard-Vakuumkammer mit einem Volumen von 500 L, welches rückführbar bestimmt wurde. Vom Hersteller wurde durch Auslitern und Wiegen das Volumen der Standard-Vakuumkammer ermittelt. Alle anderen Komponenten wurden zur Volumenbestimmung in ihren Dimensionen vermessen oder gewogen. Die Berechnung des Gesamtvolumens und der zugeordneten Messunsicherheit ist in einem *GUM*-Budget („Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement“) zusammengefasst [29]. Der *GUM* wurde von der internationalen Standardisierungsorganisation (ISO) herausgegeben und ist ein Leitfaden für die mathematische Beschreibung einer Messung. In einem sogenannten Budget werden alle Eingangsgrößen zusammengefasst. Über Modellgleichungen wird das Messergebnis mit der zugeordneten Unsicherheit berechnet.

Des Weiteren existiert an der LL-RRK eine Einrichtung zur Messung der Aktivität und zur Erzeugung der Radonaktivitätskonzentration. Diese besteht aus einem hochreinen Germanium-Detektor (HPGe) und einem dafür entwickelten Emanationsgefäß, in welchem sich die

Radium-226-Quelle befindet, aus der Radon-222 emaniert (Emanationsquelle). Das gasförmige Radon aus der Emanationsquelle wird über einen geschlossenen Kreislauf mit einem Volumenstrom von 1 L/min in das Referenzvolumen überführt. Das Transfornormal zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration und Weitergabe der Einheit kann innerhalb der Standard-Vakuummkammer kalibriert werden. Zusätzlich besteht die Möglichkeit das Transfornormal von außen über einen bepumpten, edelgasdichten Kreislauf an das Referenzvolumen anzuschließen. Dafür befindet sich das Transfornormal in einem gasdichten Gehäuse.

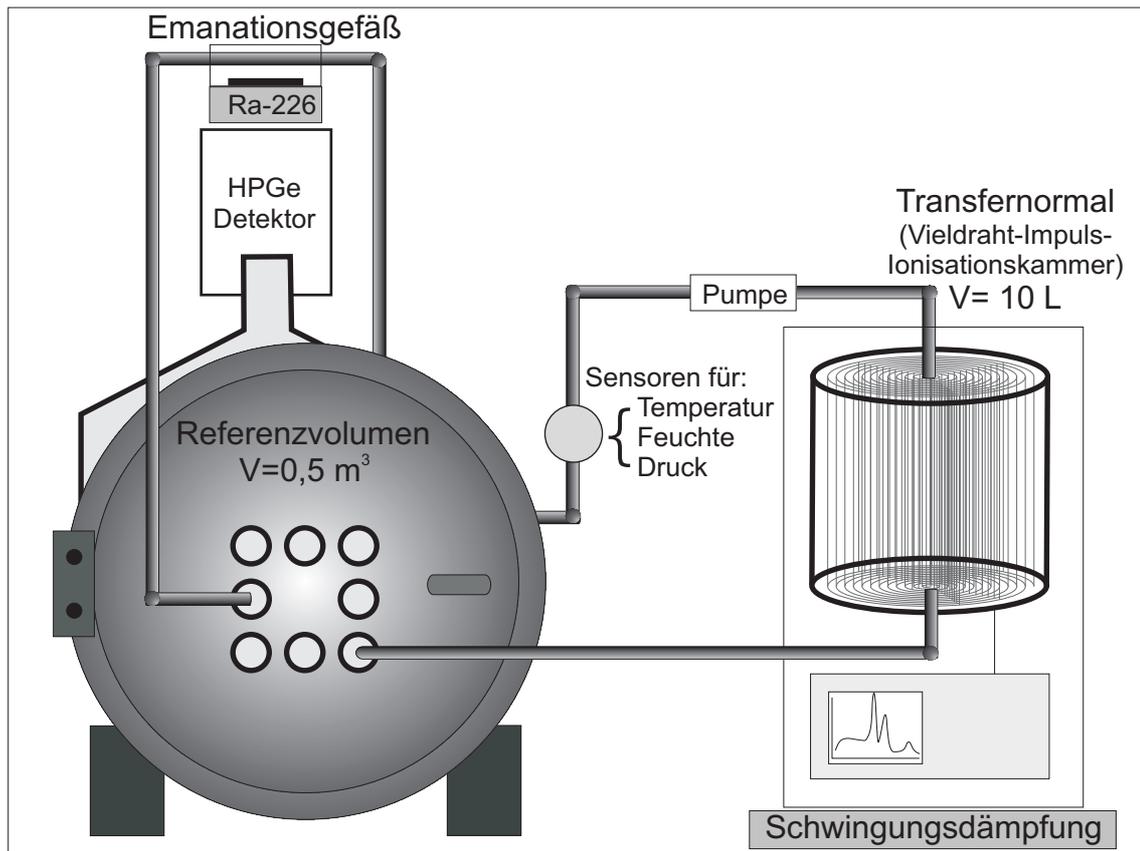


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Low-Level-Radon-Referenzkammer. Links im Bild befindet sich das Referenzvolumen, dahinter das Emanationsgefäß mit der Ra-226 Emanationsquelle und dem HPGe-Detektor. Rechts im Bild ist das Transfornormal zur Weitergabe der Einheit dargestellt. Es steht auf einer Schwingungsdämpfung um Mikrophonieeffekte zu unterdrücken. Im Messkreislauf befindet sich eine Pumpe zur Erzeugung des Volumenstroms, sowie die Sensoren für die Messung des Absolutdrucks, der Temperatur und der Feuchte.

Erfolgt eine Kalibrierung, werden die zu kalibrierenden Prüflinge (kommerzielle Messgeräte) in das Referenzvolumen gebracht und mit der Aktivitätskonzentration beaufschlagt. Während einer Messung werden im Messkreislauf die Umweltparameter Druck, Temperatur und Feuchte mit hochauflösenden Sensoren überwacht. Die Parameter werden für spätere Kalibrierungen benötigt und dementsprechend auch im Kalibrierschein angegeben. Zusätzlich

dienen die Parameter zur Überwachung von Leckagen im Referenzvolumen. Treten große Druck- und Temperaturschwankungen auf, so befindet sich eventuell im Kreislauf zwischen Referenzvolumen und Emanationsgefäß ein Leck. Einen weiteren Hinweis auf eine Leckage im Kreislauf liefert eine von der Halbwertszeit des Radons abweichende, sinkende Radonaktivitätskonzentration im Referenzvolumen.

Für Kalibrierungen im Bereich unterhalb von 1000 Bq/m^3 wird über einen Zeitraum von mehreren Tagen gemessen, um bei diesen geringen Aktivitätskonzentrationen eine hohe statistische Signifikanz der Messergebnisse der Prüflinge zu erreichen. Das Referenzvolumen muss über große Zeiträume hinweg radondicht sein, damit ausgeschlossen wird, dass die Radonaktivitätskonzentration, die sich im Referenzvolumen einstellt, nach außen entweicht oder dass Radon aus der Umgebungsluft des Labors in das Referenzvolumen hineindiffundiert. Infolgedessen wurde für den Aufbau des Referenzvolumens ausschließlich Vakuumtechnik verwendet. Alle Komponenten bestehen aus Edelstahl, da Tests zeigten, dass hier das Radon weder in das Material herein oder heraus diffundiert [14].

Das System der LL-RRK ist geschlossen und langzeitstabil gegen Änderungen des äußeren Luftdrucks. Es besteht zum einen die Möglichkeit einmalig einen gasförmigen Aktivitätsstandard (Radon-Aktivitätsnormal) in das Referenzvolumen einzuspülen, zum anderen kann über einen Emanationskreislauf kontinuierlich Aktivität zugeführt werden, um den radioaktiven Zerfall im Referenzvolumen auszugleichen und eine konstante Aktivitätskonzentration (Aufbau bis zur Sättigung) zu erhalten.

Es stehen also für die Erzeugung der Referenzatmosphären zur Zeit zwei unterschiedliche Verfahren an der PTB zur Verfügung. Beim ersten Verfahren wird ein Radon-Aktivitätsnormal verwendet. Bedingt durch den radioaktiven Zerfall sinkt die Aktivitätskonzentration in der Referenzatmosphäre. Im zweiten Verfahren wird eine Radon-Emanationsquelle eingesetzt. Im Unterschied zum ersten Verfahren werden hiermit konstante Referenzatmosphären erzeugt. Nachfolgend werden beide Verfahren vorgestellt.

3.2 Darstellung einer Referenzatmosphäre mit einem Radon-Aktivitätsnormal

Die Darstellung der Einheit Aktivitätskonzentration c in Bq/m^3 basiert auf einer Referenzatmosphäre aus Rn-222, welche mit einer definierten Aktivität A in Bq und einem definierten Referenzvolumen V in m^3 realisiert wird. Bei diesem Verfahren wird zur Erzeugung einer Referenzatmosphäre ein Radon-Aktivitätsnormal verwendet [30], [31].

Die Herstellung des Radon-Aktivitätsnormals erfolgt mit der Methode nach Picolo [32]. Die Rn-222-Aktivität wird absolut bestimmt, in dem das Radongas punktförmig ausgefroren und unter einem definierten Winkel α -spektrometrisch gemessen wird. Vom Kaltpunkt aus wird das Radongas vollständig in einen Edelstahlzylinder überführt. Da das Verfahren auf einer



Abbildung 3.2: Foto des Radon-Aktivitätsnormals. Das Radon-222 befindet sich in dem Edelstahlzylinder. Der Anschluss an ein Referenzvolumen erfolgt über einen Flansch, der Einspülzeitpunkt ergibt sich beim Öffnen der Ventile.

absolut zählenden Methode der Zerfälle beruht, die weiteren Eingangsgrößen geometrische Abmessungen sind und keine Korrekturfaktoren eingehen, werden kleine Unsicherheiten erreicht. Ein Foto des Radon-Aktivitätsnormals ist in der Abbildung 3.2 dargestellt.

Für eine primäre Kalibrierung wird der Prüfling in das Referenzvolumen gebracht und mit einem Radon-Aktivitätsnormal beaufschlagt. Im Referenzvolumen wird der gerätegebundene Nulleffekt (Untergrund) $c_{t,bg}$ des Prüflings mittels einer Messung in synthetischer Luft [33] (radonfrei) über einen festgelegten Zeitraum bestimmt und später von dem Messwert des Prüflings bei der Kalibrierung abgezogen. Dieser gerätegebundene Nulleffekt des Prüflings ergibt sich aus dessen Kontamination mit dem langlebigen Pb-210.

Zum Zeitpunkt t_c wird das im Aktivitätsnormal enthaltene Radon in das Referenzvolumen eingespült, um eine Referenzatmosphäre zu erzeugen. Die Aktivitätskonzentration, die sich im Referenzvolumen einstellt, wird anschließend in Abhängigkeit von der Zeit vom Prüfling gemessen. Während der Messzeit ändert sich durch radioaktiven Zerfall die Radonaktivitätskonzentration im Referenzvolumen. Die Aktivitätskonzentration, die sich im Volumen in Abhängigkeit von der Zeit einstellt, ist gegeben durch die Gleichung:

$$c(t) = \frac{A_0}{V} \cdot e^{(-\lambda \cdot t)} \quad (3.1)$$

mit den Parametern:

- $c(t)$: Aktivitätskonzentration im Volumen als Funktion der Zeit
- A_0 : Aktivität zum Bezugszeitpunkt $t = 0$
- λ : Zerfallskonstante
- V : Referenzvolumen
- t : Zeit .

Der Messwert der Aktivitätskonzentration des Prüflings $c_t(t)$ setzt sich zusammen aus der gemessenen Aktivitätskonzentration c_{t,t_c} zum Zeitpunkt t_c und dem Untergrund $c_{t,bg}$ zu

$$c_t(t) = c_{t,t_c} \cdot e^{-\lambda(t-t_c)} + c_{t,bg}. \quad (3.2)$$

Der Kalibrierfaktor k_t des Prüflings wird bestimmt durch den Quotienten aus dem Sollwert der Aktivitätskonzentration $c(t_c)$ der Gleichung 3.1 zum Zeitpunkt des Einspülens t_c und des Istwerts der Messwertanzeige des Prüflings $c_t(t_c)$

$$k_t = \frac{c(t_c)}{c_t(t_c) - c_{t,bg}}. \quad (3.3)$$

Die Anzeige des Prüflings ist nach Abzug des Nulleffekts mit dem Kalibrierfaktor k_t zu multiplizieren. [34]

3.3 Darstellung der Referenzatmosphäre mittels einer Emanationsquelle

Die Rückführbarkeit der Aktivitätskonzentration erfolgt bei diesem Verfahren über die Radium-Aktivität $A(\text{Ra-226})$ der Emanationsquelle, den Emanationsgrad χ der Emanationsquelle und das Referenzvolumen V . Es werden konstante Referenzatmosphären erzeugt, da im Referenzvolumen kontinuierlich Aktivität hinzugeführt wird.

In diesem Verfahren werden zur Erzeugung der Referenzatmosphäre Radon-Emanationsquellen eingesetzt. Die Radon-Emanationsquellen bestehen aus einem Radium-226-Aktivitätsnormal, aus welchem Rn-222 herausdiffundiert. Die Geometrie des Radium-226-Aktivitätsnormal wurde bei der Herstellung so gewählt, dass sie der PTB-Standardgeometrie entspricht und das Radium berührungssicher abgedeckt ist. Der Begriff *Emanation* beschreibt den Austritt des gasförmigen Rn-222 beim α -Zerfall des festen Ra-226. Erstmals erwähnt wird der Begriff *Emanation* um 1900 von Rutherford zur Beschreibung der Emission radioaktiver Partikel von Thoriumverbindungen [35], [36].

3.3.1 Aufbau der Emanationsquelle

Die Radon-Emanationsquelle ist ein flächenhaftes Präparat. Sie besteht aus einem Filterpapier, auf welches Radium-Lösung bekannter spezifischer Aktivität tropfenweise aufgebracht und eingetrocknet wird. Aus der durch Wägung ermittelten Gesamtmasse aller Tropfen und der spezifischen Aktivität der verwendeten Lösung ergibt sich die Aktivität der Präparats. Die Unsicherheit der Aktivität ergibt sich im Wesentlichen aus der spezifischen Aktivität der Lösung, da die Unsicherheit der Lösungsmasse um eine Größenordnung kleiner ist als die der spezifischen Aktivität der Lösung [37].

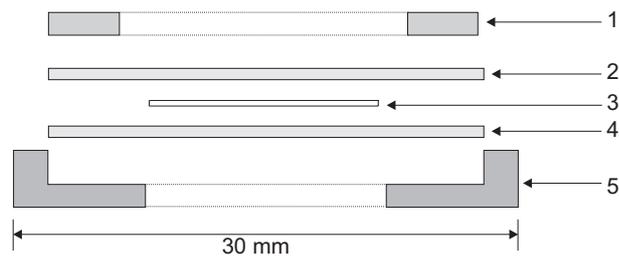


Abbildung 3.3: Schematischer Schnitt durch eine Emanationsquelle. Die mit Nummern gekennzeichneten Objekte sind: (1) Aluminium-Ring (1 mm), (2) Polyethylen-Folie (24 μm), (3) Filterpapier mit Radium-Lösung (15 μm), (4) Polyethylen-Folie (24 μm), (5) Aluminium-Ring (3 mm) [38].

Eine Emanationsquelle besteht aus fünf Teilen. In der Abbildung 3.3 ist ein schematischer Schnitt durch eine Emanationsquelle dargestellt. Das im Inneren liegende 15 μm dicke Filterpapier (3) mit einer definierten Menge Radium-226-Lösung (Trägerkonzentration aus 0,5% $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ in 1 mol/L $\text{HCl}_{(aq.)}$) wird durch zwei Polyethylen-Folien (2 und 4) mit einer Dicke von 24 μm abgedeckt. Zusätzlich werden die Polyethylen-Folien durch vier Klebpunkte miteinander fixiert. Das Präparat ist zwischen den zwei Aluminium-Ringen (1 und 5) eingefasst. Durch diesen Aufbau ist das Ra-226 berührungssicher abgedeckt und die Quelle ist bezüglich des Radiums eine umschlossene Quelle. Bezüglich des Radons ist diese Quelle als offene Quelle zu betrachten. Das aus der Emanationsquelle herausdiffundierende Radon wird mit einem Volumenstrom über einen edelgasdichten Kreislauf in ein Referenzvolumen überführt (siehe Abbildung 3.1, Seite 8). In Abbildung 3.4 ist ein Foto der Emanationsquelle Ra-226 2011-1623 dargestellt.

3.3.2 Bestimmung des Emanationskoeffizienten

Durch den α -Zerfall des Ra-226 entsteht innerhalb der Emanationsquelle das gasförmige Rn-222. Der effektive Emanationskoeffizient χ beschreibt den Quotienten der Aktivität von Rn-222 in Luft (der Anteil, der die Quelle verlassen hat) und der Ra-226-Aktivität der Quelle, so dass gilt: $\chi = \frac{A(^{222}\text{Rn})}{A(^{226}\text{Ra})}$. Für die Emanationsquellen gilt im Allgemeinen $0 < \chi \leq 1$.



Abbildung 3.4: Foto einer Emanationsquelle mit der Bezeichnung Ra-226 2011-1623. Der äußere Ring besteht aus Aluminium, im Inneren befindet sich das Filterpapier mit der Radium-Lösung, welches durch die Polyethylen-Folien berührungssicher abgedeckt ist.

Das Verfahren zur Bestimmung des Emanationskoeffizienten beruht auf dem Zählratenvergleich umschlossener und emanierender Ra-226 Präparate gleicher Geometrie. Nachfolgend werden die Begriffe offene und umschlossene Quelle verwendet. Als umschlossene Quellen werden Radium-Quellen bezeichnet, bei denen das Radium berührungssicher abgedeckt ist und aus denen kein Radon herausdiffundiert, so dass für den effektiven Emanationskoeffizienten $\chi = 0$ gilt [39]. Offene Quellen hingegen sind Quellen, die bezüglich des Radiums berührungssicher abgedeckt sind, aber aus denen Radon herausdiffundiert, so dass $\chi \neq 0$ ist.

Zur Bestimmung des Emanationskoeffizienten wurde ein Emanationsmessplatz auf Basis der γ -Spektrometrie aufgebaut. An dem Radon-Emanationsmessplatz (REM1) werden die Zählraten analog zu dem für den Thoron-Emanationsmessplatz entwickelten Verfahren [40] bestimmt und ausgewertet. Dabei muss die Auswertung an die Zerfallskette des Rn-222 angepasst werden.

Der γ -Spektrometrie-Messplatz dient zur Bestimmung des Radionuklidgehalts der Radium-226-Quellen. Dieser besteht aus einem Halbleiter-Detektor, der Detektorabschirmung, der Messelektronik und einem PC zur Datenauswertung. Eine genaue Beschreibung über die Funktion von Halbleiterdetektoren zur γ -Spektrometrie findet sich in [41] und [42]. Für den Detektor wird ein Kristall aus hochreinem Germanium (engl. high purity germanium, HPGe) entsprechend kontaktiert und in einem Vakuumkryostaten montiert. Dieser Kryostat befindet sich in einem Dewar-Gefäß und wird ständig auf die Temperatur von flüssigem Stickstoff herabgekühlt. Die Abschirmung des Detektors ist in der Abbildung 3.5 dargestellt und dient dazu, die Umgebungsstrahlung zu reduzieren. Um den durch Radon und dessen Folgeprodukte (Pb-214 und Bi-214) verursachten Untergrund während der Messungen zu verringern,

steht der Detektor in einem klimatisierten Raum, in dem ständig Luft zugeführt wird mit einer Luftwechselrate von $\beta = 7,7 \text{ h}^{-1}$ und einem Frischluftanteil von 100 %.



Abbildung 3.5: Der γ -Spektrometrie-Messplatz REM 1 der PTB.

Für die Messungen wird das Radium-226-Aktivitätsnormal in ein Emanationsgefäß eingebaut, welches fest auf dem HPGe-Detektor installiert ist. In dem Emanationsgefäß befindet sich eine Aussparung, so dass über die Emanationsquelle ein Volumenstrom geführt wird, von dem, ausgehend über einen edelgasdichten Kreislauf, das emanierende Radon in das Referenzvolumen überführt wird. Ein Foto des Emanationsgefäßes ist in Abbildung 3.6 dargestellt.

Die Aktivitätskonzentration c ergibt sich für dieses Verfahren aus der Gleichung

$$c = \frac{A(^{226}\text{Ra}) \cdot \chi}{V} \cdot \phi(\vec{r}, z), \quad (3.4)$$

wobei $\phi(\vec{r}, z)$ die Homogenitätsfunktion für die Verteilung der Aktivität im Volumen ist. Im idealen Fall der Gradientenfreiheit der Aktivitätskonzentration gilt $\phi(\vec{r}, z) = 1$. Im Referenzvolumen befindet sich ein Axialventilator, der eine homogene Verteilung der Aktivitätskonzentration während einer Messung garantiert.

Der effektive Emanationskoeffizient einer Emanationsquelle berechnet sich über

$$\chi = \frac{A(^{222}\text{Rn})}{A(^{226}\text{Ra})} = 1 - \frac{A(^{214}\text{Pb})}{A(^{226}\text{Ra})}, \quad (3.5)$$



Abbildung 3.6: Foto des Emanationsgefäßes entwickelt von T. Reich. Die Aussparung zur Führung des Volumenstroms für den Abtransport des emanieren Radons befindet sich in der Mitte des Gefäßes.

wobei $A(^{214}\text{Pb})$ die Aktivität des verbleibenden Pb-214 in der Quelle ist. Durch den α -Zerfall können Kerne aus der Quelle herausgeschleudert werden, die bei Elektrolytpräparaten (wie sie beim Thoron-Emanationsmessplatz verwendet werden) zu Recoil-Korrekturfaktoren in der Berechnung führen. Die Kerne haben bei dieser Quellenpräparation aber nicht genug Energie um die Polyethylen-Folie zu durchdringen. Somit lagern sich auch an den Innenwänden des Emanationsgefäßes keine Kerne an und die Recoil-Korrekturfaktoren entfallen.

Für die Berechnung des effektiven Emanationskoeffizienten aus den γ -Spektren ist die Kenntnis des Nulleffekts (Untergrund) erforderlich. Der Untergrund erster Art ist der konventionelle Untergrund der γ -Spektrometrie und wird nachfolgend mit bg_1 bezeichnet. Die γ -spektrometrischen Messungen werden dafür ohne Emanationsquelle durchgeführt. Es wurde durch Messungen überprüft, ob sich in diesem Messverfahren ein Untergrund zweiter Art ergibt. Dieser setzt sich zusammen aus dem zusätzlich produzierten Untergrund durch die Aktivität der Folgeprodukte, die sich im Emanationsgefäß anlagern. Für die Messung zur Bestimmung des Untergrunds zweiter Art wird die Emanationsquelle aus dem Emanationsgefäß entfernt und das leere Emanationsgefäß mit aufgebautem Folgeproduktanteil wird γ -spektrometrisch vermessen. Der Untergrund zweiter Art ist also eine Funktion der Aktivität der Emanationsquelle in Abhängigkeit von der Zeit. Im beschriebenen Messaufbau wird das Radon schnell aus dem Emanationsgefäß abtransportiert, so dass kein Beitrag innerhalb des Emanationsgefäßes durch den Zerfall des Radons entsteht. Es baut sich im Rahmen der Messgenauigkeit kein Untergrund zweiter Art in dem Emanationsgefäß auf.

Um die Rückführbarkeit zu gewährleisten, gibt es zwei verschiedene Ansätze. Der erste Ansatz beruht auf der Rückführbarkeit der γ -Spektrometrie einschließlich der Kerndaten der betreffenden Isotope, der Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors und der Geometrie der Messung. Der zweite Ansatz beruht auf den Zählratenverhältnissen von offenen und umschlossenen Quellen gleicher Geometrie. Dabei werden die Zählraten einzelner γ -Linien in den jeweiligen Spektren miteinander verglichen. Hierbei gehen keine Nachweiswahrschein-

lichkeiten, Übergangswahrscheinlichkeiten und geometrische Faktoren der Messung mit ein. Dies reduziert die Gesamtunsicherheit signifikant.

Für die Berechnung der Emanation nach dem Ansatz der Zählratenverhältnisse ergibt sich aus Gleichung 3.5:

$$\chi = 1 - \left(\frac{(Z_k(^{226}\text{Ra}) - Z_{bg1}(^{226}\text{Ra})) \cdot (Z_m(^{214}\text{Pb}) - Z_{bg1}(^{214}\text{Pb}))}{(Z_k(^{214}\text{Pb}) - Z_{bg1}(^{214}\text{Pb})) \cdot (Z_m(^{226}\text{Ra}) - Z_{bg1}(^{226}\text{Ra}))} \right) \quad (3.6)$$

mit den Parametern

χ	: effektiver Emanationskoeffizient
$Z_k(^{226}\text{Ra})$: Zählrate des Radium-226 der Kalibrierquelle
$Z_k(^{214}\text{Pb})$: Zählrate des Blei-214 der Kalibrierquelle
$Z_m(^{226}\text{Ra})$: Zählrate des Radium-226 der Emanationsquelle
$Z_m(^{214}\text{Pb})$: Zählrate des Blei-214 der Emanationsquelle
$Z_{bg1}(^{226}\text{Ra})$: Zählrate des Untergrunds erster Art für Radium-226
$Z_{bg1}(^{214}\text{Pb})$: Zählrate des Untergrunds erster Art für Blei-214

Aus dem Emanationskoeffizienten wird mit der Gleichung 3.4 eine Aktivitätskonzentration im Referenzvolumen ermittelt.

Die Kalibrierung eines Prüflings mit dieser Methode erfolgt analog dem Verfahren mit dem Radon-Aktivitätsnormal, indem der Sollwert und der Istwert der Messwertanzeige des Prüflings für die Aktivitätskonzentration im Referenzvolumen miteinander verglichen werden, wie in Gleichung 3.3 gezeigt.

Die Abbildung 3.7 zeigt exemplarisch einen Ausschnitt aus den gemessenen γ -Spektren einer Emanationsquelle und einer umschlossenen Kalibrierquelle. Der Ra-226-Peak mit einer Emission bei 186 keV ist gekennzeichnet. Zusätzlich sind die drei Pb-214-Peaks mit den Emissionen bei 242 keV, 295 keV und 352 keV hervorgehoben. Befindet sich die Emanationsquelle im Emanationsgefäß und in einem geschlossenen Kreislauf, in dem ein Volumenstrom erzeugt wird, so stellt sich ein Ungleichgewicht zwischen Ra-226 und dessen Folgeprodukten ein. Aus Gleichung 3.5 geht hervor, dass für die Berechnung des effektiven Emanationskoeffizienten die Verhältnisse der Peaks von Ra-226 und Pb-214 genutzt werden. Für Ra-226 existiert nur eine Gammalinie bei 186,211 keV mit einer Emissionswahrscheinlichkeit von 3,59 %, die direkt in die Berechnung eingeht [43]. Bei Pb-214 existieren mehrere Gammalinien, jedoch wurde für die Berechnungen die Linie mit einer Emission bei 351,932 keV verwendet, da diese mit 37,6 % die höchste Emissionswahrscheinlichkeit besitzt. Die Verwendung weiterer γ -Linien trägt nicht zu einer signifikanten Reduzierung der Unsicherheit bei, ist aber zur Verifikation und zur Untersuchung systematischer Effekte des Untergrunds hilfreich. An die für die Auswertung relevanten Linien wurde im γ -Spektrum eine Summenfunktion bestehend aus einer Gaußfunktion und einer linearen Funktion angepasst. Die Auswertalgorithmen sind abhängig von der Aktivität der verwendeten Emanationsquelle

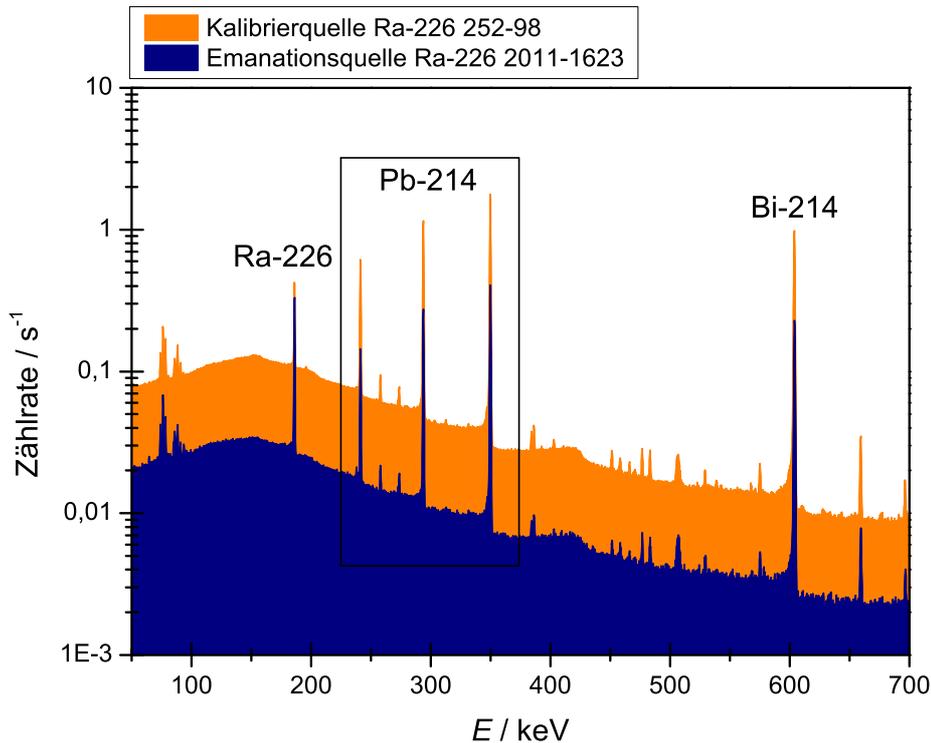


Abbildung 3.7: Exemplarische Abbildung der Zählrate pro Sekunde in Abhängigkeit von der Energie für zwei γ -Spektren in logarithmischer Darstellung. Die Kalibrierquelle ist eine umschlossene Radiumquelle mit der Nummer Ra-226 252-98 und einer Aktivität von $A = 1 \text{ kBq}$, die Emanationsquelle mit der Nummer Ra-226 2011-1623 hat eine Aktivität von $A = 883 \text{ Bq}$.

und der daraus resultierenden Zählrate und müssen deshalb für jede Emanationsquelle angepasst werden. Die Nettofläche der registrierten Zählrate aller in Gleichung 3.6 aufgeführten Parameter wurde zur Bestimmung des effektiven Emanationskoeffizienten ermittelt.

Für die Emanationsquelle mit der Nummer Ra-226 2011-1777 und der Aktivität $A = 214 \text{ Bq}$ sind in der Darstellung 3.8 die Nettoflächen der Zählraten von Ra-226 und Pb-214 in Abhängigkeit von der Messzeit t abgebildet. Die Messung der Quelle erfolgte im Messplatz REM1 über einen Zeitraum von 26 Tagen. Ein γ -Spektrum wurde jeweils über einen Messzeitraum von einem Tag aufgenommen. Aus jedem einzelnen γ -Spektrum wurde die entsprechende Nettofläche ermittelt und in der Abbildung dargestellt. Für die einzelnen Zählraten wurde die Unsicherheit nach der Poisson Statistik aus der Wurzel der Zählrate (\sqrt{N}) bestimmt. Als Mittelwert für die Nettofläche von Ra-226 ergibt sich $\bar{Z}_m(^{226}\text{Ra}) = (28891 \pm 176) \text{ d}^{-1}$, für Pb-214 ergibt sich $\bar{Z}_m(^{214}\text{Pb}) = (24319 \pm 198) \text{ d}^{-1}$.

In der Abbildung 3.9 ist der Emanationskoeffizient χ in Abhängigkeit von der Messzeit t für die Emanationsquelle Ra-226 2011-1777 mit der Aktivität $A = 214 \text{ Bq}$ dargestellt. Gemäß Gleichung 3.6 wird der Emanationskoeffizient mit der dazugehörigen Unsicherheit errech-

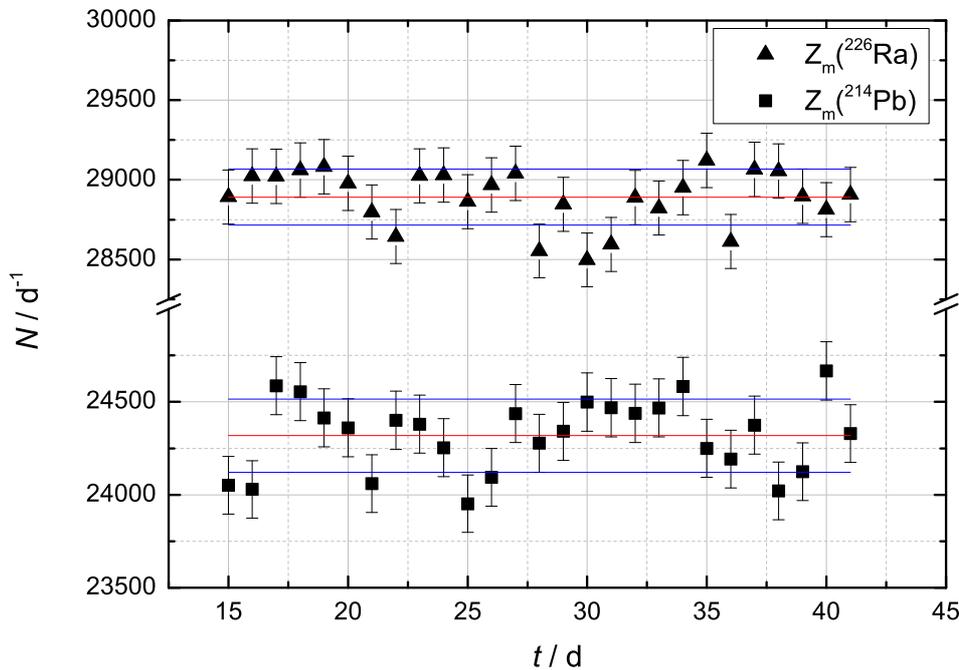


Abbildung 3.8: Dargestellt ist die Nettofläche der Zählrate von Ra-226 und Pb-214 in Abhängigkeit von der Zeit t für die Emanationsquelle Ra-226 2011-1777. Zur Übersicht wurde der Mittelwert (rot) mit der dazugehörigen Standardabweichung (blau) für die Zählrate von Ra-226 und Pb-214 ermittelt und dargestellt.

net. Nach fünf Halbwertszeiten hat sich innerhalb der Quelle ein radioaktives Gleichgewicht gebildet, so dass eine konstante Menge Rn-222 emaniert wird. Die Messung zeigt: Der Emanationskoeffizient ist im Rahmen der Messunsicherheit für $t > 5 \cdot T_{1/2}$ konstant und beträgt $\chi = 0,8695 \pm 0,0028$. Er wird folglich als Mittelwert der Einzelmessung über die gesamte Messzeit bestimmt und so in Gleichung 3.4 verwendet. Die Aktivitätskonzentration, die sich demzufolge im 500-L-Referenzvolumen einstellt, liegt für diese Emanationsquelle bei $c = (365 \pm 5) \text{ Bq/m}^3$ (siehe auch Tabelle 3.3, Seite 22).

Die über die Emanation errechnete Aktivitätskonzentration wird mit einem kommerziellen Radon-Messgerät verglichen (dies ist im Bereich von 1 kBq/m^3 kalibriert), welches für diese Messung in das 500-L-Referenzvolumen eingebracht wird. In der Abbildung 3.10 ist die gemessene Aktivitätskonzentration c in Abhängigkeit von der Zeit t dargestellt bei Verwendung der Emanationsquelle Ra-226 2011-1623. An diese Messwerte des kommerziellen Radon-Messgeräts wird eine Aufbaufunktion der Form

$$c(x) = c_0 \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot x}) + c_{t,bg} \quad (3.7)$$

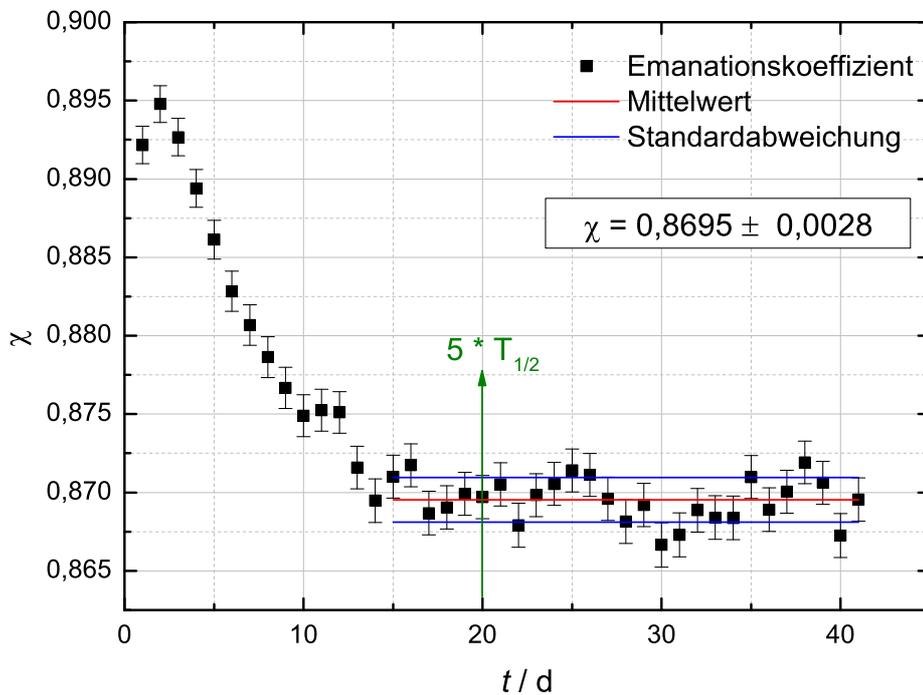


Abbildung 3.9: Dargestellt ist der Emanationskoeffizient χ in Abhängigkeit von der Zeit t für die Emanationsquelle Ra-226 2011-1777 im REM 1.

angepasst. Die Funktion 3.7 beschreibt den Aufbau der Radonaktivitätskonzentration im Referenzvolumen, wobei der Wert c_0 die Aktivitätskonzentration im radioaktiven Gleichgewicht darstellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass im Referenzvolumen die Aktivitätskonzentration in Abhängigkeit von der Zeit steigt, bis sich ein Sättigungswert von $c = 1300 \text{ Bq/m}^3$ einstellt. Die Darstellung zeigt, dass die vom kommerziellen Messgerät (Prüfling) gemessene Aktivitätskonzentration mit der aus dem Emanationskoeffizienten bestimmten Aktivitätskonzentration nach einer Messzeit von 500 Stunden übereinstimmt. Das kommerzielle Messgerät zeigt aber in diesem Bereich der Aktivitätskonzentration unterhalb von $c = 1500 \text{ Bq/m}^3$ große statistische Schwankungen. Mit diesem neuen Verfahren können Prüflinge, die besonders im Bereich unterhalb von 1000 Bq/m^3 große statistische Schwankungen zeigen, über einen beliebig langen Zeitraum bei einer konstanten Aktivitätskonzentration kalibriert werden. Dazu wird der Wert der Aktivitätskonzentration im radioaktiven Gleichgewicht, der sich aus dem Emanationskoeffizienten der Emanationsquelle nach fünf Halbwertszeiten ergibt, mit dem Messwert des Prüflings verglichen und so der Kalibrierfaktor bestimmt.

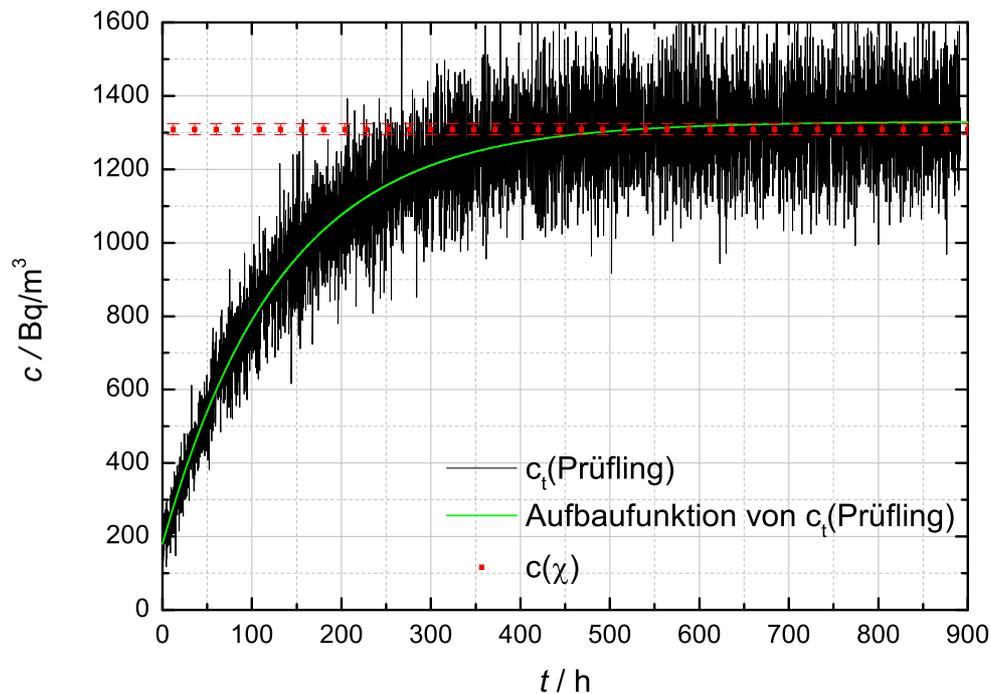


Abbildung 3.10: Dargestellt ist die errechnete Aktivitätskonzentration aus den Werten der Emanation (rote Vierecke), die gemessene Aktivitätskonzentration von einem Radon-Messgerät (Linie in schwarz) und die angepasste Aufbaufunktion (Linie in grün) in Abhängigkeit von der Zeit für die Emanationsquelle Ra-226 2011-1623. Die Quelle ist im REMI eingebaut und wird mit einem Volumenstrom von 1 L/min durchpumpt, so dass sich im 500 L Referenzvolumen nach 500 h Messzeit eine gleichmäßige Aktivitätskonzentration einstellt. Der Kalibrierfaktor wird bei der Aktivitätskonzentration im radioaktiven Gleichgewicht aus dem Quotienten der errechneten Aktivitätskonzentration $c(\chi)$ und der angepassten Aufbaufunktion $c_t(\text{Prüfling})$ bestimmt. Der gerätegebundene Nulleffekt des Prüflings wird ebenfalls für die Berechnung berücksichtigt.

3.3.3 Übersicht der Emanationsquellen

Die Tabelle 3.1 fasst alle hergestellten und gemessenen Emanationsquellen zusammen. Wie bereits beschrieben, werden die effektiven Emanationskoeffizienten γ -spektrometrisch bestimmt und die Aktivitätskonzentration wird berechnet. Da alle Quellen individuell in Handarbeit hergestellt werden, haben alle unterschiedliche effektive Emanationskoeffizienten. Weiterhin wurde beobachtet, dass sich in Abhängigkeit von der Lagerungszeit der Emanationsquellen der Emanationskoeffizient ändert. Dies ist zum Teil auf eine Veränderung des Diffusionsdrucks innerhalb der Quellen zurückzuführen. Darüber hinaus umschließt das in der Radium-226-Lösung enthaltene Barium das Radium [44], so dass unterschiedliche Emanationskoeffizienten auftreten.

Quelle Nr.	A in Bq	χ	c in Bq/m ³
Ra-226 2011-1775	113	0,685 ± 0,012	152 ± 4
Ra-226 2010-1585	210	0,158 ± 0,014	65 ± 6
Ra-226 2011-1777	214	0,870 ± 0,002	365 ± 5
Ra-226 2010-1816	273	0,059 ± 0,009	32 ± 5
Ra-226 2011-1624	512	0,684 ± 0,003	686 ± 9
Ra-226 2010-1817	788	0,761 ± 0,005	1172 ± 16
Ra-226 2011-1623	883	0,759 ± 0,002	1314 ± 16
Ra-226 2010-1671	1315	0,728 ± 0,011	1870 ± 34

Tabelle 3.1: Zusammenfassung aller Emanationsquellen mit Bezeichnung, Aktivität, effektiven Emanationskoeffizienten und der daraus resultierenden Aktivitätskonzentration im 500 L Referenzvolumen. Die Unsicherheiten sind jeweils mit dem Erweiterungsfaktor $k=1$ angegeben.

Mit den in der Tabelle 3.1 vorgestellten Emanationsquellen werden konstante Referenzatmosphären im Bereich unterhalb von 1900 Bq/m³ im 500 L Referenzvolumen erreicht. Erstmals sind Langzeitkalibrierungen für $t \geq 5$ Tage in einer konstanten Referenzatmosphäre möglich.

Unsicherheitsbudget für die Berechnung der Emanation

In Tabelle 3.2 ist exemplarisch ein Unsicherheitsbudget für die Berechnung des effektiven Emanationskoeffizienten der Quelle Ra-226 2011-1777 dargestellt. Die Berechnung der Unsicherheit erfolgt gemäß dem *Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement* [29]. Die Zählrate des Ra-226 Peaks und des Pb-214 Peaks wird aus dem γ -Spektrum bestimmt. Für die Zählraten wird im Unsicherheitsbudget eine Typ B Normalverteilung angenommen. Mit Gleichung 3.6 ergibt sich für $\chi = 0,870 \pm 0,002$ mit dem Erweiterungsfaktor $k = 1$.

Größe	Wert	Standardmess- unsicherheit	relative Unsicherheit	Beitrag zur Unsicherheit
$Z_k(^{226}\text{Ra})$	$117,045 \cdot 10^3 \text{ d}^{-1}$	575 d^{-1}	0,5 %	21,5 %
$Z_{bg1}(^{226}\text{Ra})$	$1225,3 \text{ d}^{-1}$	$83,6 \text{ d}^{-1}$	6,8 %	4,6 %
$Z_m(^{214}\text{Pb})$	24361 d^{-1}	156 d^{-1}	0,6 %	37,1 %
$Z_{bg1}(^{214}\text{Pb})$	$467,3 \text{ d}^{-1}$	$43,7 \text{ d}^{-1}$	9,4 %	2,7 %
$Z_k(^{214}\text{Pb})$	$765,816 \cdot 10^3 \text{ d}^{-1}$	981 d^{-1}	0,1 %	1,4 %
$Z_m(^{226}\text{Ra})$	28978 d^{-1}	170 d^{-1}	0,6 %	32,7 %
χ	0,86971	$1,39 \cdot 10^{-3}$	0,16 %	

Tabelle 3.2: Unsicherheitsbudget gemäß dem Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement [29] der Nettozählraten der Peaks von Ra-226 mit $E_\gamma(^{226}\text{Ra}) = 186 \text{ keV}$ und Pb-214 mit $E_\gamma(^{214}\text{Pb}) = 352 \text{ keV}$ für ein γ -Spektrum.

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration erfolgt nach Gleichung 3.4 mit den in Tabelle 3.3 dargestellten Werten. Für dieses Beispiel geht exemplarisch der aus den Nettozählraten von Ra-226 und Pb-214 (für eine Einzelmessung von 24 h) errechnete effektive Emanationskoeffizient ein.

Größe	Wert	Standardmess- unsicherheit	relative Unsicherheit	Beitrag zur Unsicherheit
A	214,00 Bq	2,14 Bq	1,0 %	79,1 %
χ	0,86971	$1,39 \cdot 10^{-3}$	0,2 %	2,0 %
V	$0,51029 \text{ m}^3$	$2,52 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3$	0,5 %	18,9 %
c	$364,7 \text{ Bq/m}^3$	$4,11 \text{ Bq/m}^3$	1,1 %	

Tabelle 3.3: Unsicherheitsbudget für die Berechnung der Aktivitätskonzentration nach Gleichung 3.4. Die Standardmessunsicherheit für die Aktivität wurde dem Wägeschein entnommen. Die Unsicherheit für den Emanationskoeffizienten folgt aus der Tabelle 3.2. Das Volumen des Referenzvolumens wurde durch eine blasenfreie Füllung mit Wasser bestimmt [45]. Der Wert des Gesamtvolumens V berücksichtigt ebenfalls das Volumen des Prüflings sowie das Volumen des Emanationsgefäßes und der Rohrleitungen.

3.3 Darstellung der Referenzatmosphäre mittels einer Emanationsquelle

Die in Tabelle 3.1 aufgeführten Aktivitätskonzentrationen im Referenzvolumen errechnen sich alle aus den Mittelwerten der berechneten effektiven Emanationskoeffizienten χ der Emanationsquelle. Die Tabelle 3.4 mit den berechneten Emanationskoeffizienten für eine Einzelmessung dient ausschließlich zur Darstellung der Auswertung.

3.4 Vergleich der primären Verfahren

Bei beiden vorgestellten Verfahren zur Erzeugung einer Referenzatmosphäre handelt es sich um Primärverfahren zur Darstellung der Aktivitätskonzentration. Hierbei wird die Messwertanzeige des Prüflings mit der errechneten Aktivitätskonzentration verglichen. Aus den Messwerten wird mit der Gleichung 3.3 der Kalibrierfaktor des Prüflings bestimmt. Da beide, bis auf die Volumenbestimmung, welche auf die Gesamtunsicherheit einen geringen Einfluss hat, unabhängig voneinander sind, können sie im Rahmen der Entwicklung optimaler Kalibrierungen kombiniert oder wahlweise verändert werden.

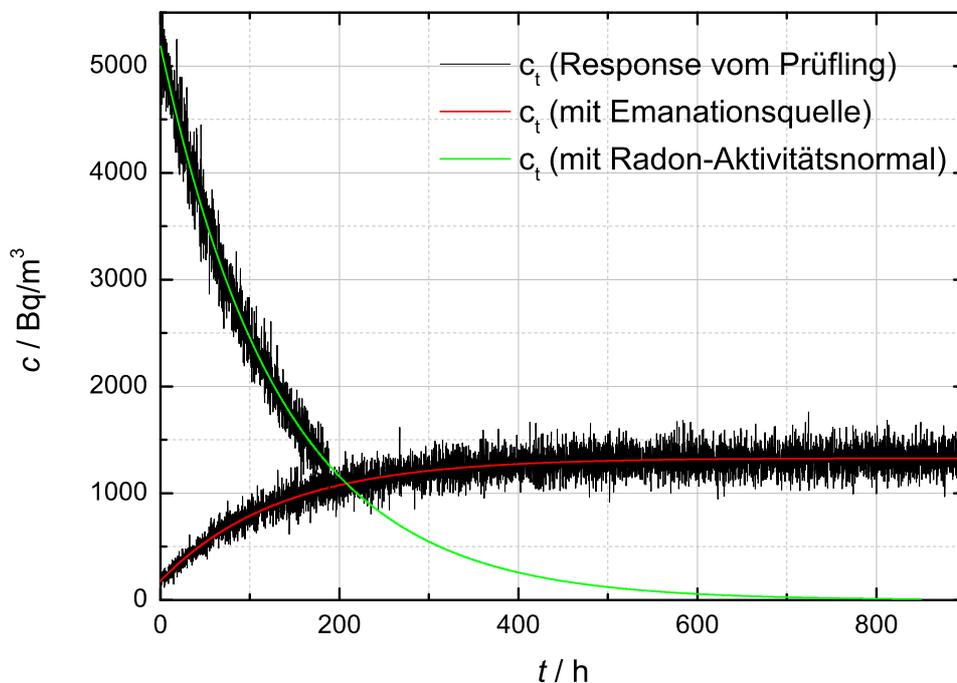


Abbildung 3.11: Vergleich der beiden primären Verfahren: Mit der Emanationsquelle Ra-226 2011-1623 wurde eine konstante Referenzatmosphäre bei $c = 1300 \text{ Bq/m}^3$ im Referenzvolumen von 500 L erzeugt. An die Response des Prüflings (schwarz) wurde die Aufbaufunktion (rot) angepasst. Das Radon-Aktivitätsnormal PTB-6.11-2009-1566 wurde in die Referenzatmosphäre eingespült. Das Abklingen der Aktivitätskonzentration wurde gemessen und an die Response (schwarz) wurde die Zerfallsgleichung (grün) angepasst. Die Response des Prüflings ist für beide Verfahren in der obigen Darstellung kombiniert.

Messgeräte, die im ersten Verfahren (Erzeugung der Referenzatmosphäre mit dem Radon-Aktivitätsnormal) eine schlechte Statistik aufweisen, werden durch Anwendung des zweiten

Verfahrens (Erzeugung der Referenzatmosphäre mit einer Emanationsquelle) kalibriert, da hier konstante Referenzatmosphären erzeugt werden. Die Kalibrierung wird dafür über einen längeren Zeitraum durchgeführt, um eine hinreichende Statistik und damit möglichst kleine Unsicherheiten zu erreichen.

Die Abbildung 3.11 zeigt den Vergleich der beiden primären Verfahren. Bei Anwendung des ersten Verfahrens mit dem Radon-Aktivitätsnormal sinkt die Aktivitätskonzentration innerhalb des Referenzvolumens und nach $t = 800$ h ist die Aktivitätskonzentration im Referenzvolumen vollständig abgeklungen. An diesen exponentiellen Abfall wird die Zerfallsgleichung angepasst. Beim zweiten Verfahren wird mit einer Radon-Emanationsquelle nach fünf Halbwertszeiten innerhalb des Referenzvolumens eine konstante Aktivitätskonzentration erzeugt. Die Response des Prüflings wird gemessen und die Aufbaufunktion wird angepasst. Mit dieser neuen Methode werden die Prüflinge über einen beliebig langen Zeitraum kalibriert, um einen Kalibrierfaktor mit kleinen statistischen Unsicherheiten zu erreichen. Mit beiden Verfahren ist eine Kalibrierung bei 1300 Bq/m^3 möglich, wobei beim ersten Verfahren nur ein Zeitbereich von maximal 24 h gewählt wird, während beim zweiten Verfahren über einen längeren Zeitraum kalibriert wird. Jedoch ergeben sich bei Verwendung des Radon-Aktivitätsnormal für den Kalibrierfaktor wesentlich größere Unsicherheiten als bei dem Verfahren mit der Emanationsquelle, die bei einer primären Kalibrierung im Bereich von 5 bis 6 % für den Erweiterungsfaktor $k=1$ liegen. Der Erweiterungsfaktor $k=1$ definiert ein Intervall, in dem der Wert der Messgröße mit einer Wahrscheinlichkeit von 68,27 % liegt. Wird die erweiterte Messunsicherheit mit $k=2$ angegeben, so liegen 95,45 % der Werte in dem Intervall.

Die Erzeugung der Referenzatmosphären mit den Emanationsquellen bietet die Möglichkeit, stabile Referenzatmosphären von 150 Bq/m^3 bis $1,9 \text{ kBq/m}^3$ zu generieren. Damit ist eine Kalibrierung von kommerziellen Messsystemen mit kleinen Unsicherheiten in diesem Bereich der Aktivitätskonzentration zum ersten Mal möglich.

Kapitel 4

Darstellung und Weitergabe: Metrologie des Radons

4.1 TransfERNormal

Zur Darstellung und Weitergabe der Einheit Aktivitätskonzentration c in Bq/m^3 wurde ein TransfERNormal entwickelt. Dieses besteht aus einer großvolumigen Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer, der Messelektronik und einer Software zur Auswertung der Messsignale. Mit der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer werden in Abhängigkeit der Energie α -Teilchen detektiert und in einem Energiespektrum dargestellt. Die Aktivitätskonzentration ergibt sich aus dem Quotienten der Zählrate für einen Energiebereich in Abhängigkeit von der Messzeit und dem aktiven Volumen.

Nachfolgend werden der Aufbau der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer, die Messelektronik und der Auswertalgorithmus erläutert.

4.1.1 Aufbau der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer (VIK)

Die großvolumige Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer (abgekürzt VIK) besteht aus zwei parallelen Leiterplatten zwischen denen je nach Modell ca. 400 bis 1000 senkrechte Stäbe eingelötet sind, um ein Volumen von 10 L einzuschließen. Vergleichbare Systeme besitzen nur ein Volumen von maximal 1 L, daher die Bezeichnung „großvolumig“ für die neuentwickelte VIK.

Für den Aufbau der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer wurden runde Platten aus dem keramischen Material Rogers 4350B gefertigt [46], da sich in verschiedenen Testreihen zeigte, dass dieses Material rauschärmer ist als das häufig verwendete Glasfaserepoxyd-FR4. Durch das Anlegen der Hochspannung entstehen auf der Platine kleine Kriechströme, die von dem Material Rogers 4350B stärker unterdrückt werden. In Abbildung 4.1 ist schematisch der

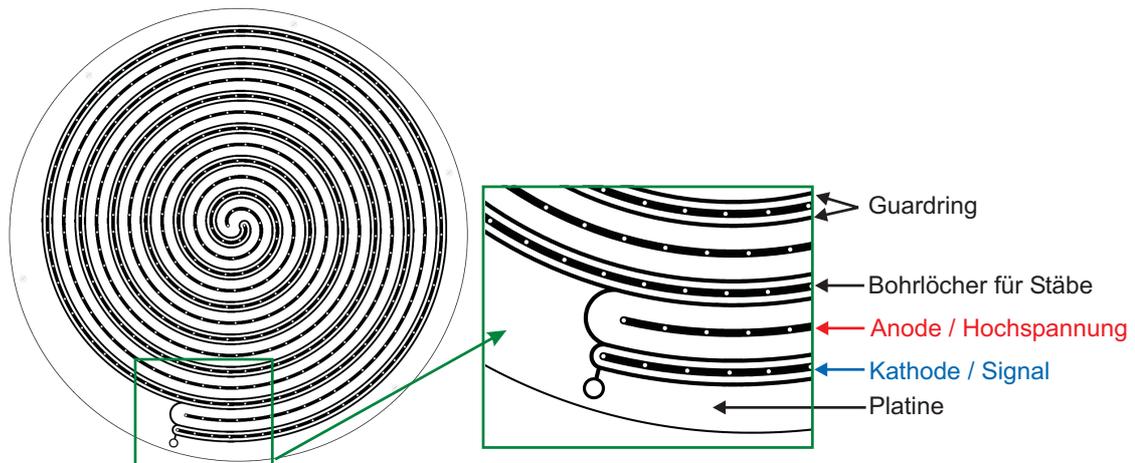


Abbildung 4.1: Abgebildet ist eine schematische Darstellung der Platine für die VIK. Das grüne Rechteck kennzeichnet einen Bereich, der rechts neben der Platine in Vergrößerung dargestellt ist. Hier sind die einzelnen Leiterbahnen mit deren entsprechenden Funktionen beschriftet.

Aufbau der Platine dargestellt. Die Leiterbahnen bestehen aus zwei archimedischen Spiralen, auf denen sich die Bohrlöcher für die Elektrodenstäbe befinden [47]. Über die Leiterbahnen werden die einzelnen Elektrodenstäbe miteinander verbunden. Die äußere Spirale wird zusätzlich durch einen Guardring abgeschirmt, damit Störeffekte und Kriechströme minimiert werden. Die äußere Spirale ist die Signalleitung, damit es selbst im ungünstigsten Fall (leitendes Abschirmmaterial berührt die Elektrodenstäbe) nicht zu einem Kontakt zwischen der Hochspannung und dem Abschirmmaterial kommt. Alle verwendeten Platinen sind doppelseitig beschichtet, um eine optimale Kontaktierung zwischen den Leiterbahnen und den Elektrodenstäben zu garantieren.

Zwischen zwei gegenüberliegenden Platinen befinden sich die Elektrodenstäbe im Abstand von 1 cm. Sie bestehen aus 1 mm dicken Kupferrundstangen, welche vergoldet wurden, um Korrosionseffekte zu reduzieren. Des Weiteren verfügt die VIK über Abschlussbleche aus Edelstahl, die zur Abschirmung dienen, um ein möglichst homogenes elektrostatisches Feld innerhalb des aktiven Volumens zu erzeugen [48]. In Abbildung 4.2 ist ein Foto vom Kammermodell VIK „hoch“ dargestellt. Die Abschlußbleche befinden sich oberhalb und unterhalb der Platinen der VIK. Diese VIK besitzt zusätzlich in der Mitte eine Verstreibungsplatine zur Stabilisierung, auf der sich keine Leiterbahnen befinden. Diese Platine verfügt über ca. 400 Bohrlöcher mit einem Durchmesser von 6 mm, so dass ein Luftaustausch zwischen dem oberen und unteren Teil der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer stattfindet. Eine Abbildung der Verstreibungsplatine befindet sich im Anhang A.4 auf der Seite 81.

Mit der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer werden die Entladungen der α -Teilchen in Luft detektiert. Der Messbereich, in dem mit der VIK die Energien der α -Teilchen gemessen werden, liegt zwischen 0 bis 22 MeV. Um die Entladungen der α -Teilchen zu messen, wird an



Abbildung 4.2: Foto der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer Modell „hoch“.

die VIK von außen eine Spannung angelegt, die ein elektrostatisches Feld erzeugt. Die im Volumen der VIK erzeugten Ladungsträger werden durch das elektrische Feld getrennt. Die positiven Ionen wandern zur Kathode, während die negativen Ionen zur Anode wandern. Für alle Messungen wird kein Zählgas verwendet. Die α -Spektrometrie und damit der Nachweis von Rn-222 erfolgt in Luft, so dass das System auch offen benutzt werden kann. Es tragen nur die entstandenen Ionen zum Messsignal bei, da die Elektronen durch Elektronenanlagerung an elektronegative Gasmoleküle wie z. B. Sauerstoff schnell eingefangen werden [49]. Die Reichweite der α -Teilchen in Luft liegt im Bereich von 4 cm bis 8 cm. Um vollständige Ionisationen zu registrieren und eine gute statistische Signifikanz selbst bei geringen Zählraten zu erhalten, besitzt die VIK ein aktives Volumen von 10 Liter.

Modell	Höhe der Kammer	Durchmesser der Platine	Anzahl der Stäbe
VIK „hoch“	220 mm	279 mm	478
VIK „flach“	100 mm	397 mm	1028
VIK „flach 2“	100 mm	397 mm	52

Tabelle 4.1: Zusammenfassung der Geometrie der konstruierten, großvolumigen Vieldraht-Impuls-Ionisationskammern.

Für Tests wurden drei verschiedene Vieldraht-Impuls-Ionisationskammern gebaut. Die zwei vollständig mit Elektrodenstäben bestückten Vieldrahtkammern haben ein aktives Volumen von 10 L, aber eine unterschiedliche Höhe. In der Tabelle 4.1 sind die Dimensionen von drei unterschiedlichen Modellen dargestellt. Die VIK „flach 2“ wurde für Untersuchungen über das Rauschverhalten der einzelnen Bauteile nur mit 52 Elektrodenstäben bestückt.

4.1.2 Aufbau des Vorverstärkers

Der Vorverstärker wurde in der PTB entwickelt, um die in der VIK auftretenden analogen Signale optimal zu registrieren. Erfolgt ein α -Zerfall in der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer, so kommt es zu einer Spannungsabsenkung. Da die Spannungsmessung zu rausch anfällig ist, werden mit dem Vorverstärker kleine Ströme gemessen, in Spannungen gewandelt, verstärkt und an den Auswertalgorithmus übergeben. Der Vorverstärker wird direkt auf das Abschlußblech montiert, um einen kurzen Signalweg der unverstärkten Signale zu erhalten.

Die Platine des Vorverstärkers besteht aus Glasfaserepoxyd-FR4-Material [50]. Für den Vorverstärker wird dieses Material verwendet, da hier keine materialbedingten Rauscheffekte nachweisbar sind. Auf der Platine befindet sich eine Hochspannungseinspeisung, da die Hochspannung extern über ein zusätzliches Modul erzeugt wird. Kommt es zu einem α -Zerfall in dem aktiven Volumen des Detektors, so fließt ein Strom von wenigen Pikoampere. Über elektronische Bauteile erfolgt in dem Vorverstärker die Strom-Spannungswandlung nach dem Messprinzip „JFET mit Gain“ [51], um ein möglichst niedriges Spannungsrauschen zu erreichen. Die so erhaltene Spannung wird durch einen CR-RC-Filter [52] geführt, um unerwünschte Frequenzen herauszufiltern. Der CR-RC-Filter ist ein Bandpassfilter und besitzt sowohl ein Differenzier- als auch ein Integrierglied mit den zwei gleichen Zeitkonstanten $\tau_1 = 33 \cdot 10^{-3}\text{s}$ und $\tau_2 = 33 \cdot 10^{-3}\text{s}$. Für die Impulse beträgt die Ladungssammelzeit etwa 10 ms bei dem gegebenen Elektrodendrahtabstand von 1cm und einer Hochspannung von 600 V. Die Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 sind so gewählt, dass sie in etwa dem Dreifachen der Ladungssammelzeit entsprechen. Die Ladungssammelzeit ist abhängig vom Anstieg der Impulse und kann somit auch durch Veränderung der Hochspannung und durch den Filter selbst variiert werden. Mit Hilfe dieses Bandpasses und durch Berechnung der Übertragungsfunktion wird ein bestimmter Frequenzbereich hervorgehoben, während höhere beziehungsweise niedrigere Frequenzen als eine Referenzfrequenz abgeschnitten oder geschwächt werden. In Abbildung 4.3 ist der Schaltplan der Vorverstärkerplatine dargestellt. Die Größenordnungen der einzelnen Bauteile können hier entnommen werden. Zusätzlich befindet sich unter A.6 der Bestückungsplan des Vorverstärkers. In den Vorverstärker wurden erfolgreich Testsignale eingespeist. Damit wird eine optimale Energieauflösung unter Beibehaltung der Linearität über den gesamten Messbereich gewährleistet.

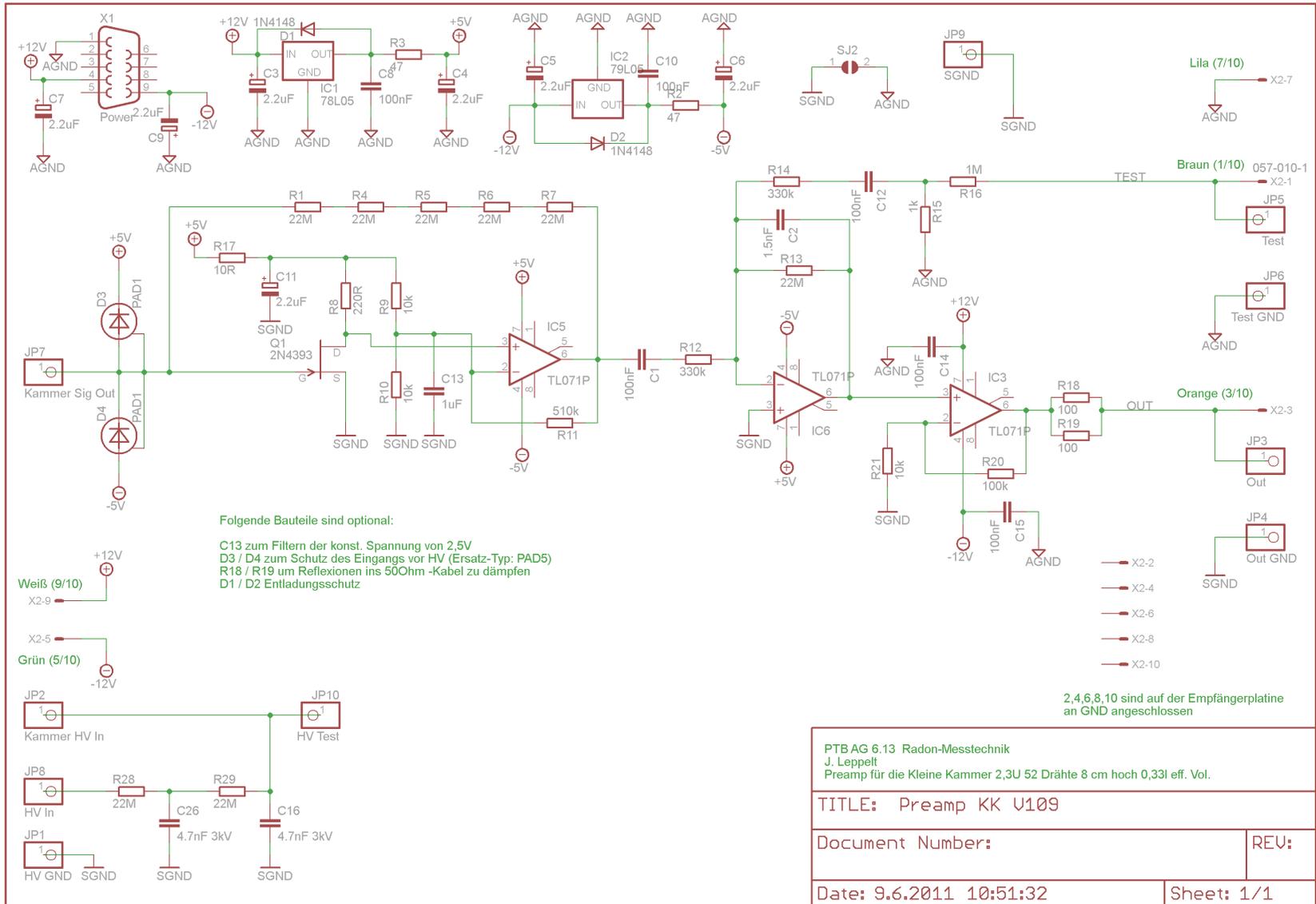


Abbildung 4.3: Schaltplan der verwendeten Vorverstärkerplatine, entwickelt von Jörg Leppelt.

Rauscharmer Vorverstärker

Verschiedene Tests mit dem Vorverstärker zeigten, dass die durch das Radon und dessen Folgeprodukte erzeugten Impulse mit einem Rauschen unterhalb von 50 Hz überlagert sind. Entscheidend für das Rauschverhalten des Vorverstärkers ist der Teil der Platine, an welchem das Kathodensignal der VIIK eingespeist wird, da es sich hierbei um das unverstärkte Originalsignal handelt. Dieser Teil besteht aus einem Operationsverstärker, einem Feldeffekttransistor und einem Widerstand. Für den in Abbildung 4.3 dargestellten Schaltplan ergeben sich drei unterschiedliche Rauschquellen:

- das Spannungsrauschen des Operationsverstärkers,
- das Stromrauschen des Operationsverstärkers und
- das Widerstandsrauschen.

Das Spannungsrauschen des Operationsverstärkers liegt im Nanovolt-Bereich und ist deshalb wesentlich kleiner als die beiden anderen Rauschtypen. Die Rauschspannung errechnet sich aus dem Produkt des Stromrauschens mit dem Rückkopplungswiderstand über $U = R \cdot I$. Die Rauschspannung liegt im Bereich $\mu\text{V}/\sqrt{\text{Hz}}$, d. h. sie ist vom Frequenzbereich abhängig. Wird der Frequenzbereich größer gewählt, so verkleinert sich das Spannungsrauschen.

Zusätzlich weist der Vorverstärker ein frequenzabhängiges sogenanntes rosa Rauschen (auch als $1/f$ -Rauschen bezeichnet) auf. Für die Ursachen des $1/f$ -Verhaltens existieren in der Literatur verschiedene Ansätze über Parameter und Bauelemente, die zu diesem Rauschen führen. Nach [53] rufen diverse Ursachen das $1/f$ -Rauschen hervor, wobei hier hauptsächlich die Kriechströme der Oberflächen und das Dielektrikum genannt sind. Wird der verwendete Sperrschicht-Feldeffekttransistor auf 120 bis 160 K gekühlt, so verringert sich das Rauschen maximal um bis zu 30 % [54]. Um die Physik des Rauschprozesses zu verstehen, muss aber das gesamte System untersucht werden. Ist das Rausch-Spektrum nur an einem Punkt des Systems bekannt, so kann keine Aussage über die Physik des Rauschprozesses getroffen werden. Ein weiterer Ansatz ist, dass der Operationsverstärker das $1/f$ -Rauschen hervorruft. Der verwendete Widerstand hat als größten Anteil nur thermisches Rauschen, welches dann in dem Messaufbau zu weißem Rauschen führt. Das thermische Rauschen des Widerstands im stromfreien Betrieb liegt ebenfalls im $\mu\text{V}/\sqrt{\text{Hz}}$ -Bereich. In Abhängigkeit von der Verstärkung ändert sich das Rauschverhalten der Bauelemente. Die Rauschspannung am Ausgang des Vorverstärkers vor der Filterung entsteht durch quadratische Addition der Rauschbeiträge nach der Gleichung:

$$U_{ges} = \sqrt{U_I^2 + U_R^2}. \quad (4.1)$$

Ist der Wert für U_I nahezu gleichgroß dem Wert für U_R , so gilt im Allgemeinen, dass der Vorverstärker hinsichtlich des Rauschens gut optimiert ist. Bei dem hier entwickelten Vorverstärker liegen beide Werte dicht beieinander, so dass kaum eine zusätzliche Rauschoptimierung möglich ist.

Um das Rauschverhalten der einzelnen Vieldraht-Impuls-Ionisationskammern genauer zu bestimmen, wurde mit einem Kapazitätsmessgerät die Kammerkapazität vermessen. In der Tabelle 4.2 sind die Werte zusammengefasst. Es wurde jeweils die Kapazität zwischen der Hochspannung (HV) und dem Signal, zwischen der Hochspannung und dem Guardring, sowie zwischen dem Signal und dem Guardring gemessen. Der wichtige Parameter für die Charakterisierung der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammern ist die Kapazität zwischen der Hochspannungsleitung und der Signalleitung. Steigt die Kapazität an, so verschlechtert sich das Signal-Rauschverhältnis und wie in [55] beschrieben, nimmt auch das $1/f$ -Rauschen zu. Versuchsmessungen mit der VIKK „flach 2“ mit 52 Elektrodenstäben zeigen, dass sich mit steigender Länge der Leiterbahn das Rauschen erhöht. Bei der VIKK „flach“ dominiert das durch die Länge der Leiterbahnen hervorgerufene Rauschen das durch die Kapazität erzeugte Rauschen. Die VIKK „hoch“ liefert die beste Auflösung im Energiespektrum, weil hier die Leiterbahn auf der Platine im Vergleich zur VIKK „flach“ wesentlich kürzer ist. Die Länge der Leiterbahn auf der VIKK „flach“ beträgt ca. 43 m, während die Gesamtlänge der Leiterbahnen der VIKK „hoch“ ca. 20 m ausmacht.

Kammer	HV-Signal	HV-Guardring	Signal-Guardring
kommerzielles System, akt. Volumen: 0,64 L [56]	72,9 pF	8190,0 pF	73,0 pF
VIKK „hoch“	1040,0 pF	4210,0 pF	1060,0 pF
VIKK-C [57]	739,0 pF	8870,0 pF	723,0 pF
VIKK „flach 2“	810,0 pF	737,0 pF	1275,0 pF
kommerzielles System [56] + Kapazität von 1nF	1072,9 pF (+1 nF)	8190,0 pF	1073,0 pF (+1 nF)

Tabelle 4.2: Gemessene Kapazitäten der einzelnen Vieldraht-Impuls-Ionisationskammern. Für die Messungen wurde der Vorverstärker entfernt, um nur den Beitrag der Platinen und der Elektrodenstäbe zu messen. Steigt die Kapazität der VIKK, so verschlechtert sich das Signal-Rausch-Verhältnis und demzufolge auch die Energieauflösung. Die VIKK mit dem aktiven Volumen von 0,64 L stammt aus einem kommerziellen System, die VIKK-C wurde bereits im Rahmen der Arbeit [57] an der PTB angefertigt und betrieben. Auf das kommerzielle System wurde für Tests zusätzlich eine Kapazität von 1 nF angebracht. Die Kapazität zwischen HV und Signal wird durch die Anzahl der Elektrodenstäbe und der sich gegenüberstehenden Flächen bzw. Leiterbahnen hervorgerufen. Die gemessene Kapazität zwischen HV und Guard dient zur Stabilisierung der Hochspannung und kann durch den Einbau zusätzlicher Kondensatoren erhöht werden. Der Wert der Kapazität zwischen Signal und Guardring hat einen Einfluss auf das Impulssignal und sollte deshalb so gering wie möglich sein. Das kommerzielle System mit der zusätzlichen Kapazität zeigte eine erhebliche Verschlechterung des Signal-Rausch-Verhältnisses, im Vergleich zum System ohne zusätzliche Kapazität.

4.1.3 Mechanische Schwingungen und akustische Anregungen der VIK

Die Eigenschwingungen der VIK werden durch Körperschall, der sich in Festkörpern ausbreitet, und Luftschall, der sich über Luft ausbreitet, angeregt. In Abhängigkeit von der Schwingungsamplitude entsteht ein Rauschpegel, der das Messsignal und damit auch die Impulsform überlagert. Im Hallraum der PTB wurde die Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer VIK „flach“ gemessen, um die Eigenschwingungen zu charakterisieren [58].

Für die Messungen befindet sich die VIK auf dem Boden des Hallraums, dessen Eigenresonanzfrequenz bei 3 Hz liegt.

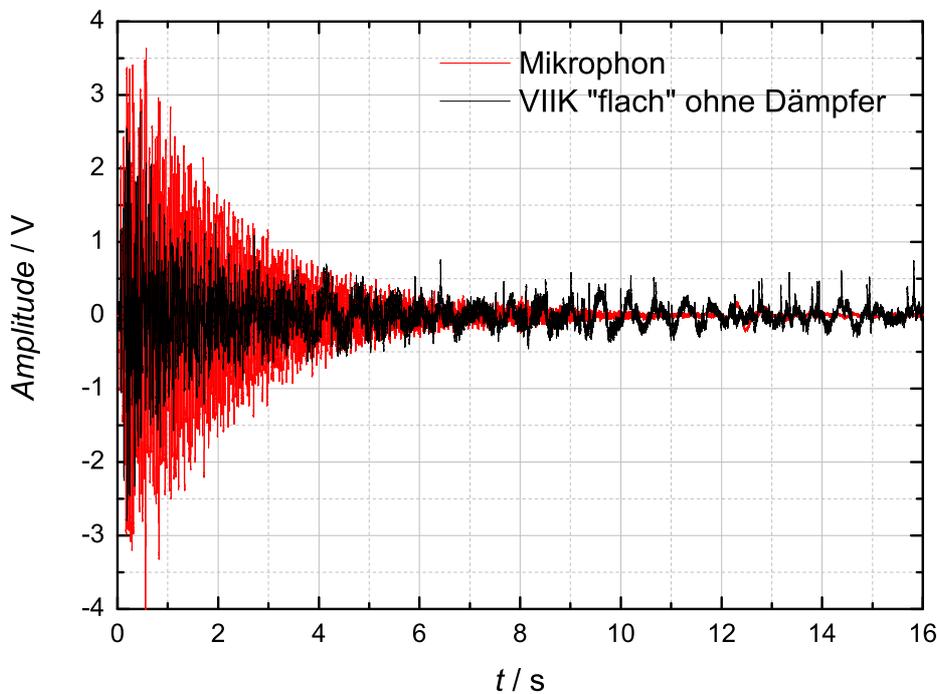


Abbildung 4.4: Dargestellt ist die Amplitude in V in Abhängigkeit von der Messzeit in s für die Anregung der VIK „flach“ (ohne Dämpfer) durch Luftschall. Das Mikrofon (rot) registriert nach 10 Sekunden nur noch kleine durch Luftschall übertragene akustische Schwingungen, während die VIK (schwarz) sehr langsam ausschwingt.

Bei der ersten Testreihe wird über der Kammer ein Mikrofon platziert, das den akustischen Untergrund während der Messungen aufzeichnet. Durch eine Luftschallschwingung wird die

VIIK angeregt. Die Impulsantwort der Kammer wird in Abhängigkeit von der Zeit gemessen. Das Mikrofon misst währenddessen gleichzeitig die in der Luft erzeugten Schwingungen.

Die Grafik 4.4 zeigt die Amplitude des aufgezeichneten Signals des Mikrophons und der VIIK in Abhängigkeit von der Zeit. Um das Ansprechen der VIIK zu untersuchen, wurde diese ohne Dämpfer auf den Boden platziert. Nach 10 Sekunden Messzeit sind in der Luft kaum noch akustische Schwingungen mit dem Mikrofon messbar. Die VIIK zeigt aber ein ausgeprägtes Schwingungsspektrum, welches langsam abklingt. Optional kann die VIIK mit Geldämpfern ausgestattet werden, um das Aufschwingen zu minimieren.

Das Ansprechen der VIIK mit und ohne Dämpfer auf Luftschallschwingungen wird verglichen, in dem eine Transformation der Messung im Zeitbereich in den Frequenzbereich durchgeführt wird. In der Abbildung 4.5 ist die Fast Fourier Transformation (FFT) der Impulsantwort für die VIIK mit und ohne Dämpfung zusammen mit der Messung des Mikrophons dargestellt. Um den Pegel bzw. die übertragene Schallleistung zu kennzeichnen, wurde die logarithmische Größe Dezibel in Abhängigkeit von der Frequenz aufgetragen. Das kontinuierliche Spektrum der Impulsantwort entspricht einer Übertragungsfunktion, wobei das Maximum der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer im Bereich von 1 bis 3 Hz liegt. Bedingt durch die konstruktive Auslegung der VIIK entsteht in diesem Bereich eine Erhöhung des Pegels, obwohl der Vergleich mit dem Messsignal des Mikrophons zeigt, dass hier wesentlich kleinere akustische Signale auftreten. Die Messungen zeigen, dass die Bestandteile der VIIK Eigenschwingungsmoden haben, die den Bereich unterhalb von 11 Hz dominieren. Systematische Untersuchungen zeigten, dass die VIIK ein unregelmäßiges Rauschen aufweist, welches nicht charakterisiert werden kann. Die unregelmäßigen Schwingungsmoden sind nicht bezeichnend für akustische Anteile, so dass eine äußere akustische Anregung ausgeschlossen wird. Der Vergleich mit dem Mikrofon zeigt, dass das Rauschen durch die Apparatur, also die VIIK selbst, verursacht wird. Während der Messungen überlagern die niederfrequenten Eigenschwingungen die Impulsform, wodurch die Impulsauflösung geringer wird.

Für weitere Tests wurde ein Beschleunigungsaufnehmer an die obere Platine der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer angebracht. Dieser misst die Schwingungen, die direkt durch Körperschall vom Boden ausgehend auf die VIIK übertragen werden. Die Impulsantwort wurde für die Kammer ohne Dämpfer und auf Geldämpfern stehend bestimmt. In der Abbildung 4.6 ist die FFT der Impulsantwort dargestellt. Die erste Eigenmode der VIIK liegt bei 100 Hz, während die Resonanzfrequenz mit den Geldämpfern bei 16 Hz liegt. Die Messung zeigt, dass im Bereich von 20 bis 100 Hz die Geldämpfer das Aufschwingen der Kammer verhindern.

Alle Abbildungen zeigen, dass die VIIK sehr empfindlich auf Luftschall reagiert, während die Übertragung des Körperschalls durch die gewählten Geldämpfer unterhalb von 100 Hz reduziert wird. Die Eigenschwingungen der Kammer sind Translations- und Rotationsschwingungen oder Überlagerungen von beiden. Für alle Messungen mit den Vieldraht-Impuls-Ionisationskammern werden auf Grund der Ergebnisse Dämpfer eingesetzt, um ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis zu erhalten. Diese Dämpfer werden so montiert, dass die VIIK auf

den Dämpfern steht. Damit wird die Übertragung des Körperschalls im Bereich von 20 bis 80 Hz signifikant reduziert.

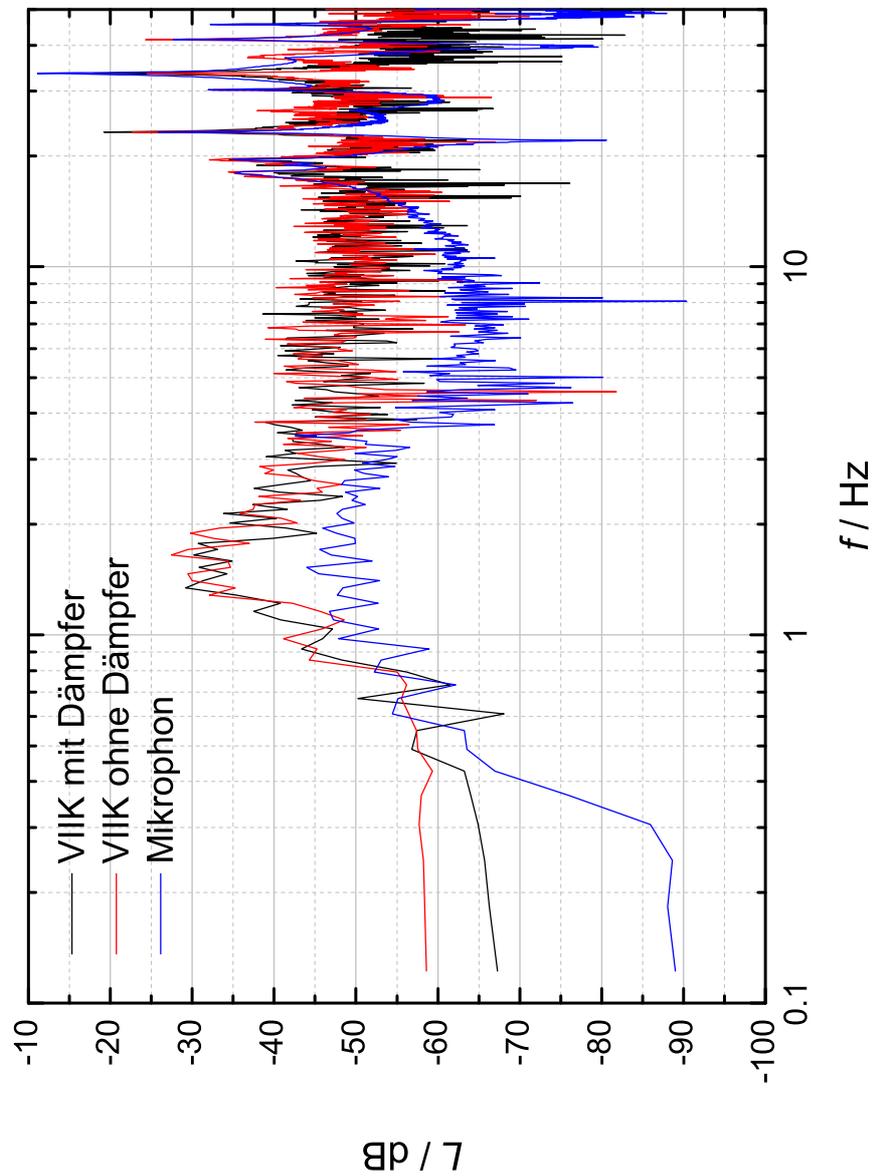


Abbildung 4.5: Frequenzspektrum der Anregung der VIKK mit Luftschall. Die Messungen wurden für die VIKK „flach“ mit (schwarz) und ohne Dämpfer (rot) durchgeführt. Das Mikrofon (blau) zeichnet die Luftschallschwingungen auf. Im Vergleich zu den Messwerten des Mikrophons weist die VIKK unterhalb von 11 Hz eine deutliche Anregung auf.

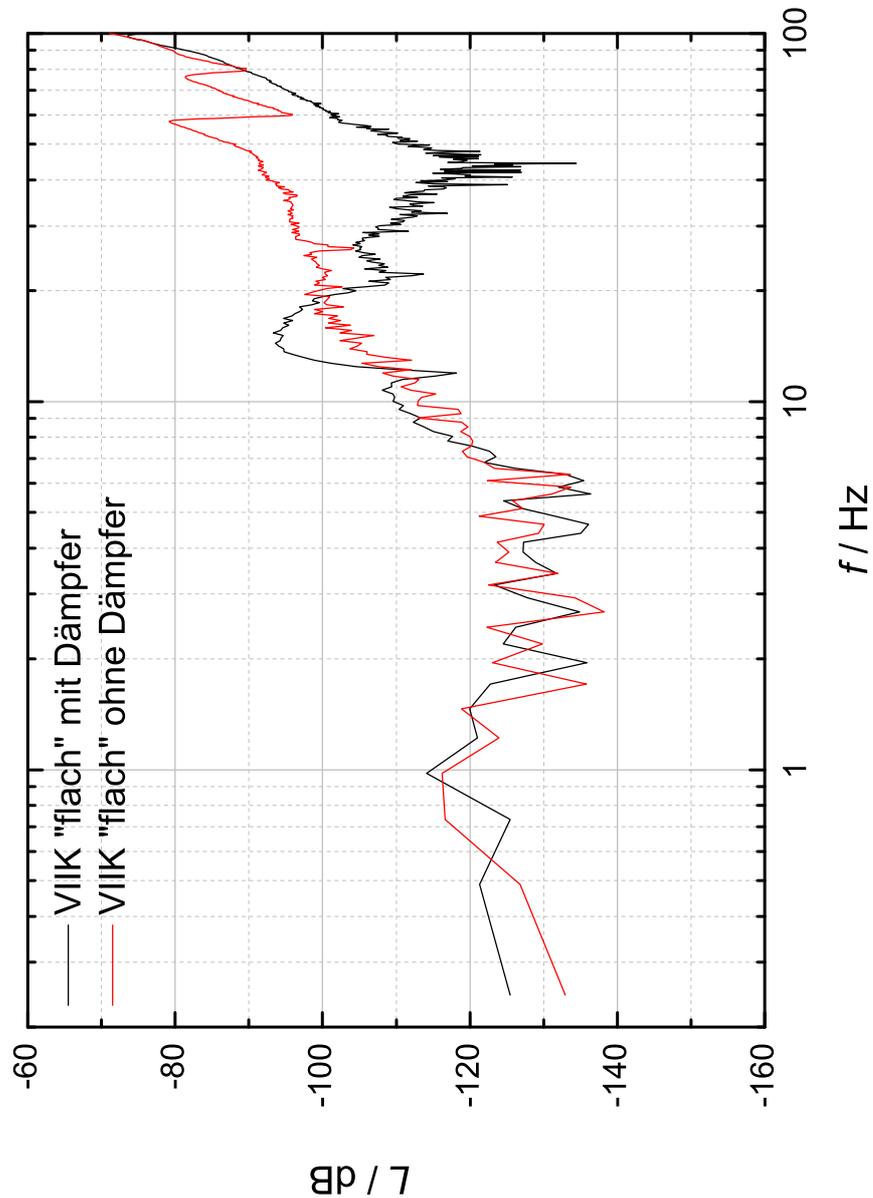


Abbildung 4.6: Frequenzspektrum der VIK „flach“ mit (schwarz) und ohne Dämpfer (rot) gemessen mit einem Beschleunigungsaufnehmer zur Bestimmung der Vibration. Steht die VIK auf Dämpfern, so wird die Schwingungsübertragung durch Körperschall im Bereich unterhalb von 100 Hz reduziert. Im Bereich von 16 Hz liegt jedoch eine Resonanzfrequenz der Geldämpfer, so dass in diesem Bereich eine verstärkte Schwingungsanregung auftritt.

4.1.4 Messwertaufnahme

Die von der VIK gemessenen und verstärkten analogen Impulse werden mit einer Wandlerkarte (deren Eigenschaften im Anhang A.6 zusammengefasst sind) in digitale Werte umgewandelt und mit einem Algorithmus digital weiterverarbeitet. Der Algorithmus wertet die Höhe der Impulse aus, errechnet die Energie und erzeugt ein Spektrum der Zählrate in Abhängigkeit von der Energie.

Algorithmus zur Auswertung

Zur besseren Übersicht folgt zuerst der Auswertalgorithmus für die idealen Impulse. Anschließend erfolgt die Beschreibung der Auswertung realer Impulse, da zusätzliche Parameter in den Algorithmus einfließen.

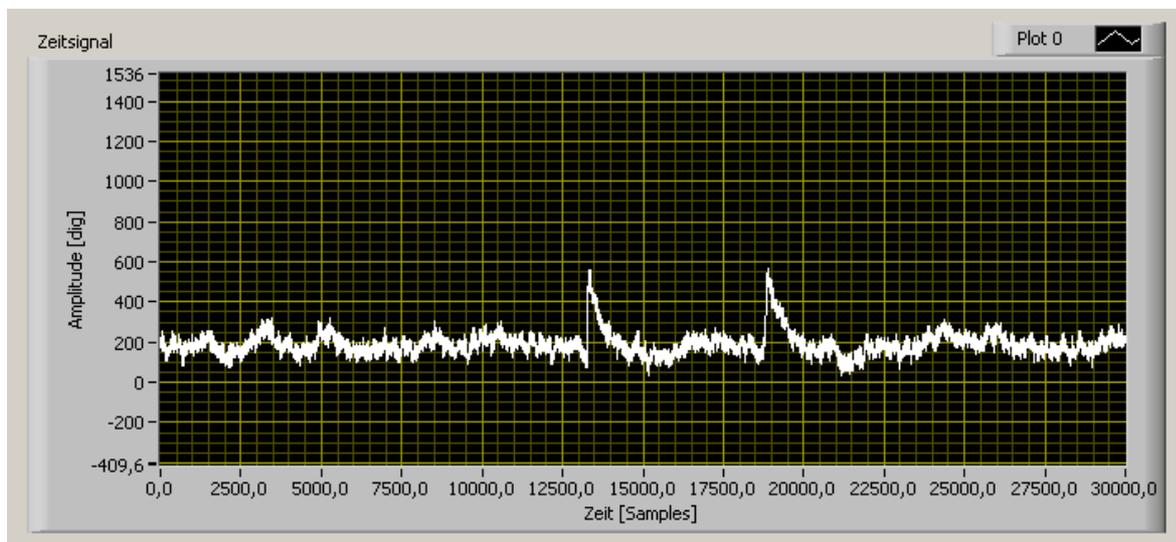


Abbildung 4.7: Bildschirmfoto einer Messung mit der VIK. Die Amplitude ist in Abhängigkeit von der Zeit (in Abtastintervallen) dargestellt. Es treten zwei Impulse auf, die ausgewertet werden.

Die im aktiven Volumen der VIK gemessenen Signale werden durch digitale Abtastung mit einer Datenerfassungskarte an die Software übergeben und verarbeitet. Für die Verarbeitung der Impulssignale wurde mit der Programmiersprache LabView [59] ein komplexer, an die Gegebenheiten angepasster, Auswertalgorithmus entwickelt.

Die Messsignale der VIK sind gleichzeitig die Eingangssignale für die digitale Auswertung. Eine Momentaufnahme der Impulse zeigt Abbildung 4.7. Um die Arbeitsweise des Auswertalgorithmus zu erläutern, ist in Abbildung 4.8 a) schematisch ein Eingangssignal für einen idealen Impuls dargestellt. Das Eingangssignal wird erzeugt von einem α -Zerfall der Energie

von 5,489 MeV und besitzt eine sehr steile Flanke und einen exponentiellen Abfall, bedingt durch die Bauweise des Vorverstärkers. Ein realer Impuls besteht am Ausgang des Vorverstärkers aus zwei im Zeitbereich miteinander gefalteten Exponentialfunktionen, die durch verschiedenartiges Rauschen überlagert sind. In der Abbildung 4.8 a) ist die Entladungszeitkonstante mit M (rot) gekennzeichnet, der Parameter U (blau) beschreibt die Impulshöhe. Im idealen Fall ist der Impulsanstieg sehr steil. Während der Entladung des Kondensators findet durch den Vorverstärker gleichzeitig eine erneute Aufladung statt. Bedingt durch diesen Effekt und durch die Ladungssammlung ist der Anstieg der Flanke im realen Fall flacher, da für die Aufzeichnung der Impulse Messzeit benötigt wird. Auf Grund dessen ergibt sich das sogenannte ballistische Defizit, welches durch die endliche Dauer der Ladungssammlung verursacht wird [60] und wodurch es nicht möglich ist, die volle Impulshöhe zu erreichen. Für die Auswertung und Energiebestimmung der Impulse wird nur der Anstieg des Signals verwendet, da der exponentielle Abfall der Impulse keine Energieinformation enthält.

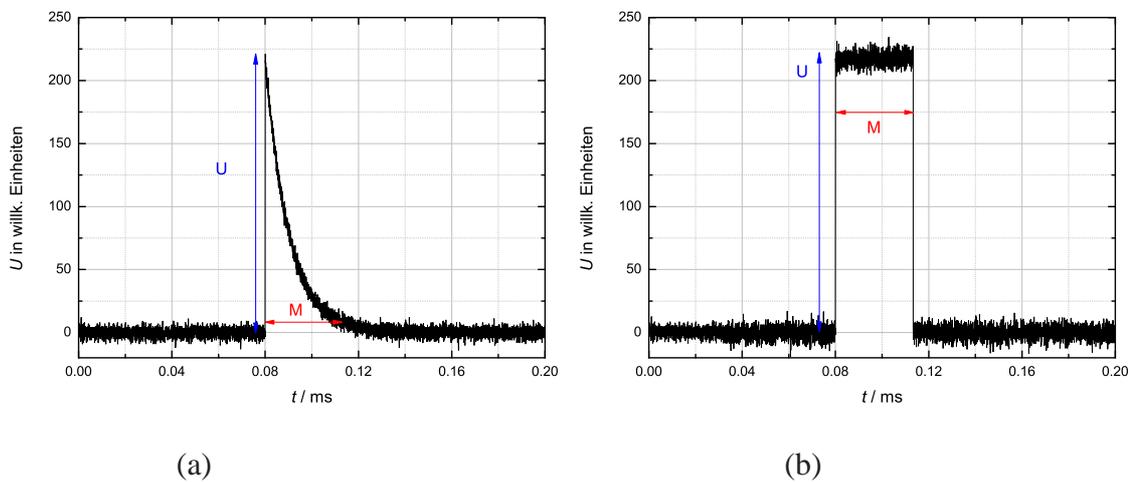


Abbildung 4.8: a) Eingangssignal eines idealen Impulses mit dem Parameter U (blau) zur Kennzeichnung der Impulshöhe und M (rot) für die Bestimmung der Entladungszeitkonstante. b) Eingangssignal wird nach Anwendung des MWD zu einem Rechtecksignal. Die Parameter U und M bleiben erhalten.

Im ersten Schritt wird zur Entfaltung des Eingangssignals der Moving Window Deconvolution Algorithmus (abgekürzt mit MWD) angewendet [60], der durch die Gleichung

$$\text{MWD}[n] = x[n] - x[n - M] + \frac{1}{\tau} \sum_{k=n-M}^{n-1} x[k] \quad (4.2)$$

beschrieben wird. Ursprünglich stammt der Algorithmus aus der γ -Spektrometrie, um die Signale des Detektors zu entfalten. Als Ergebnis wird durch Differenzieren und Integrieren mittels des MWD der Impuls in ein Rechtecksignal umgewandelt. Dabei bleibt das Rauschen

erhalten, wie in Abbildung 4.8 b) schematisch gezeigt. Mit dem Parameter M wird die Länge des Fensters, welches über die Daten wandert, gesteuert. Der Parameter M darf nicht zu groß gewählt werden, da es sonst zu Überlagerungen zwischen zwei aufeinander folgenden Impulsen kommt (Pile-Up). Das erzeugte Rechtecksignal hat eine endliche Breite durch die Ladungssammelzeit und den Anstieg der Flanke des Impulses. Der Algorithmus betrachtet zusätzlich, dass während der Entladung des Kondensators gleichzeitig Aufladungseffekte stattfinden.

Anschließend wird mittels des Algorithmus Moving Average (abgekürzt MA) der gleitende Durchschnitt von jedem Punkt im Zeitfenster gebildet, um das Rauschen herauszufiltern:

$$MA[n] = MA[n - 1] + \frac{1}{L} (MWD[n] - MWD[n - L]). \quad (4.3)$$

In Abbildung 4.9 a) ist das Verfahren schematisch dargestellt. Durch den MA-Algorithmus verbreitert sich der Puls, da für die Rauschfilterung zusätzlich der Parameter L als Fensterbreite angesetzt wird. Ist $L < M$, so entsteht das in der Darstellung gezeigte trapezförmige Signal. Die Impulshöhe U sowie die Fensterbreite M bleiben erhalten.

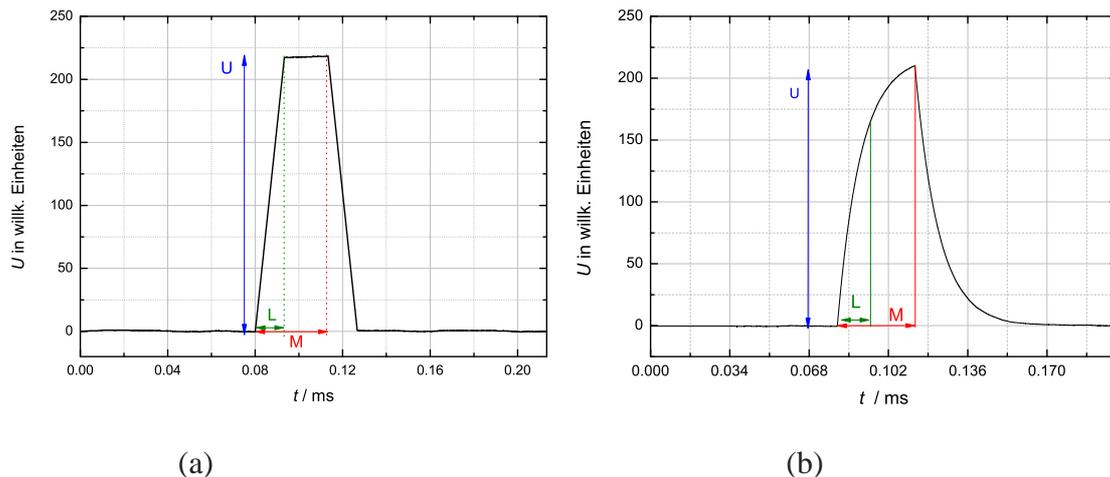


Abbildung 4.9: a) Signalform erzeugt durch Anwendung des MA mit dem zusätzlichen Parameter L für die Rauschfilterung. b) Darstellung der Parameter bei einem realen Impuls mit großer Ladungssammelzeit.

Die realen Impulse besitzen eine verrundete Flanke. Bedingt durch Mikrophonieeffekte und andere Rauschquellen kommt es zu einer Überlagerung der Impulse mit verschiedenen Frequenzen. Die Einzelimpulse werden in ihrer Höhe verändert, so dass deren Höhe oder Flächeninhalt nicht ohne weitere Verarbeitungsalgorithmen exakt zu bestimmen ist. Darüber hinaus liefert die Integration der Fläche unter dem Impuls nicht das korrekte Ergebnis, da durch die gleichzeitige Ent- und Aufladung des Kondensators die volle Energiehöhe nie erreicht wird.

Zur Auswertung der aufgezeichneten realen Impulse werden die bereits beschriebenen Algorithmen angewendet, die zur besseren Auflösung zwei mal hintereinander durchgeführt werden. Um die Energie der Impulse zu bestimmen, wird das abgetastete Impulssignal mit den Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 entfaltet. Nach Anwendung des MWD und des MA-Algorithmus ergibt sich für reale Impulse die in Abbildung 4.9 b) schematisch gezeigte Impulsform. Die linke ansteigende Impulsflanke und die rechte abfallende Impulsflanke sind durch Überlagerung mit der Ladungssammelzeit verrundet. Die Höhe U der Impulse ist proportional zu deren Energie. Um die Energie der Impulse exakt zu bestimmen muss der Parameter M so gewählt werden, dass in dem erzeugten Fenster das Maximum des Impulses liegt. Die Anwendung der vorgestellten Algorithmen ermöglicht eine genaue Bestimmung der Energie aller Impulse trotz Überlagerung mit der Ladungssammelzeit und dem Rauschen. Alle Impulse bestehen aus zwei gefalteten Exponentialfunktionen mit den zwei gleichen Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 . Um die beiden Zeitkonstanten aufzuheben, wird der MWD-Algorithmus zweimal hintereinander durchgeführt, da eine MWD-Einheit jeweils eine Zeitkonstante τ aufhebt [61]. Die doppelte Anwendung des MWD führt zu einer positiven und einer negativen Flanke, welche durch die Anwendung des MA-Algorithmus mit den beiden Parametern $L1$ und $L2$ stark verrundet ist. Nach der doppelten Anwendung des MWD und des MA ergibt sich die in Abbildung 4.10 dargestellte Singalform. Von dem sinusartigen Signal wird sowohl das Minimum als auch das Maximum bestimmt. Die abgebildete Amplitude entspricht der Energie, die proportional der Impulshöhe ist. Die Impulsenergie ergibt sich mit der Gleichung

$$E = \frac{(E_{max} - E_{min})}{2}, \quad (4.4)$$

und wird für jeden ausgewerteten Impuls vom Algorithmus berechnet.

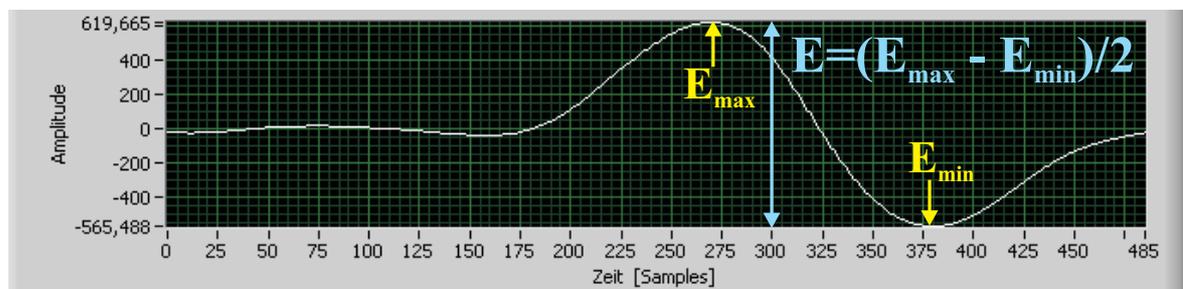


Abbildung 4.10: Momentaufnahme der Energiebestimmung nach zweifacher Anwendung des MWD-MA-Algorithmus für einen realen Impuls. Für jeden Impuls wird ein bipolares Ausgangssignal erzeugt. Die Differenz von dem Maximum und Minimum der Amplitude ergibt die Energie des Impulses.

Um das Rauschverhalten während einer Messung mit der VIK zu charakterisieren, wird fortlaufend für einen Datensatz von einer Sekunde Messzeit eine Diskrete Fourier Transformation (DFT) des Zeitsignals durchgeführt. Die Amplitude wird in Abhängigkeit von der Frequenz im Bereich von 0 bis 400 Hz ermittelt, um anschließend die hauptsächlich vorkommenden Frequenzen im Messsignal hervorzuheben. Zusätzlich wird in einem zweiten Schritt

eine Fast Fourier Transformation (FFT) durchgeführt, in der die durch die DFT gewonnenen Ergebnisse einfließen. Die Darstellung 4.11 zeigt die Amplitude in Abhängigkeit von der Frequenz für eine FFT. In dieser Momentaufnahme während einer Messung ist das charakteristische $1/f$ -Rauschen der VIKK im Bereich unterhalb von 100 Hz deutlich zu erkennen. Die niederfrequenten Anteile unterhalb von 20 Hz führen hauptsächlich zu Störungen in der Energiebestimmung und damit auch zu einer Einschränkung der Energieauflösung. Um das Gesamtrauschen zu minimieren, befindet sich die VIKK während der Messungen in einem Abschirmgehäuse. Der Querschnitt vom Aufbau des Abschirmgehäuses ist im Anhang A.5 in der Abbildung A.8 gezeigt.

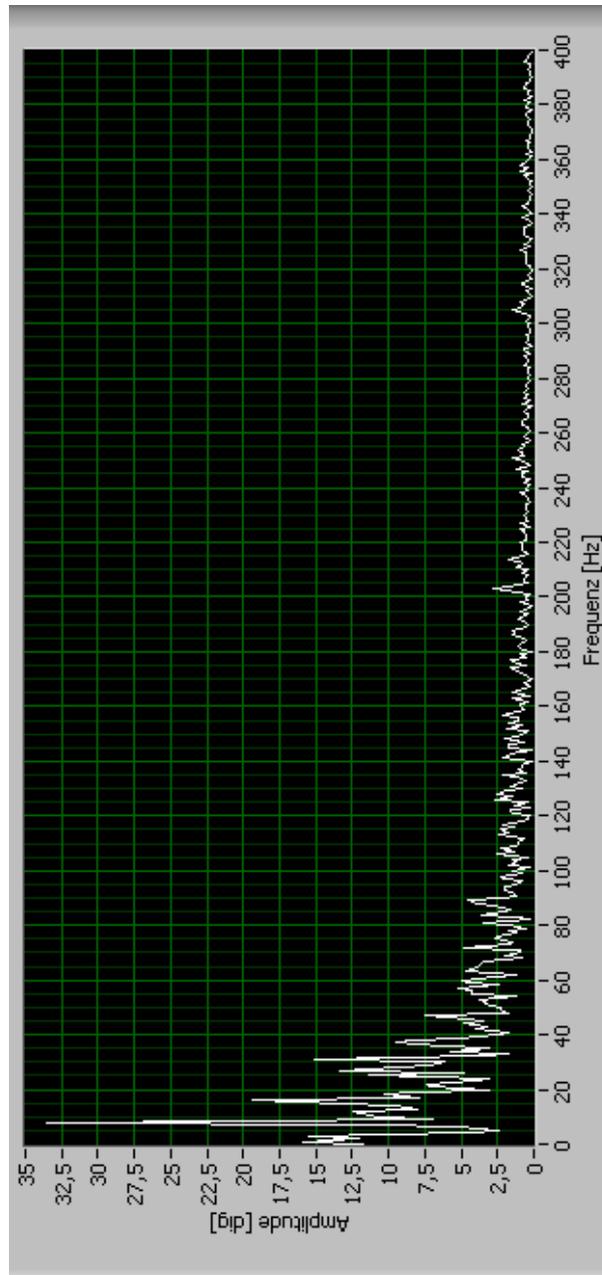


Abbildung 4.11: FFT des Zeitsignals während einer Messung. Das $1/f$ -Rauschen der VIK ist in dieser Darstellung für den Bereich von 0 bis 400 Hz gezeigt. Treten während einer Messung Störungen auf (Probleme mit der Erdung, Ausfall des Feldeffekttransistors etc.), so werden diese sofort als Erhöhungen der Amplitude sichtbar.

Parameter für den Auswertalgorithmus

Parameter	Value
ADC-Bits	12
ADC-Bereich [±V]	2
Samplerate [S/s]	30000
M_1 [s]	3,3E-3
M_2 [s]	3,3E-3
L_1 [s]	1,65E-3
L_2 [s]	1,65E-3
τ_1 [s]	3,3E-2
τ_2 [s]	3,3E-2
w [s]	1,7E-3
Threshold [V]	1,50E-1
Deglitch Trigger [s]	1,7E-3
PUR-Intervall [s]	1,13E-2
t_{Energie} [s]	8E-3

Abbildung 4.12: Ausschnitt aus dem Messdatenerfassungsprogramm.

Der Standardauswertalgorithmus zur Bestimmung der Impulshöhen bzw. der Energie besteht aus einem Eingangs-Cluster mit 14 Parametern. In der Abbildung 4.12 sind die verwendeten Standardparameter veranschaulicht. Für den ADC werden in den Fenstern *ADC-Bits* und *ADC-Bereich* die spezifischen Parameter der Datenerfassungskarte festgelegt. Die *Samplerate* legt das Abtastintervall in Samples pro Sekunde für die digitale Abtastung fest. Die Parameter M_1 und L_1 beziehungsweise M_2 und L_2 bezeichnen die Zeit für die Bestimmung der Impulshöhe und die Berechnung der Energie. Sie werden beim Moving Window Deconvolution und beim Moving Average Algorithmus verwendet (siehe Gleichungen 4.2 und 4.3). Die Parameter τ_1 und τ_2 stellen die Zeitkonstanten für den CR-RC-Filter dar. Da auf dem Vorverstärker ein zweistufiger Filter in Form eines CR-RC-Glieds sitzt, müssen auch zwei Zeitkonstanten für jedes RC-Glied existieren.

Der Parameter *Threshold* gibt die Triggerschwelle und damit die Impulshöhe bzw. Energie vor, ab welcher der Algorithmus mit der Impulsauswertung startet. Hiermit wird auch der Beginn des Energiespektrums festgelegt. Die Triggerschwelle wird in Abhängigkeit vom Rauschen auf den kleinsten möglichen Wert eingestellt, bei dem noch Impulse außerhalb des Rauschens registriert werden. Tritt ein Puls auf, so erzeugt der Parameter *Deglitch Trigger* eine virtuelle Totzeit. Der Parameter ist nötig, da das verwendete Trigger-System für einfach exponentielle Signale konzipiert ist [62]. Auf dem für die Messungen verwendeten Vorverstärker sind die Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 gleich groß, so dass der Trigger für diese Auswertung angewendet werden kann. Es ist möglich, dass der Trigger mehrere Triggerimpulse nacheinander erzeugt, obwohl nur ein Impuls vorhanden ist, der sich aber aus zwei gefalte-

ten Exponentialfunktionen zusammensetzt. Der Trigger ist korreliert mit der Samplerate und hat ein Zeitfenster von $33 \mu\text{s}$. In diesem Zeitfenster wird kein weiterer Impuls getriggert, selbst wenn Doppelimpulse auftreten sollten. Somit ist die Triggerrauflösung eingeschränkt. Das Zeitfenster *Deglitch Trigger* lässt innerhalb des Zeitintervalls nur einen Impuls zu, auch wenn irrtümlich eine Mehrfach-Triggerung durch den Trigger auftritt. Der *Deglitch Trigger* stimmt mit der Fensterlänge w des Triggers überein. Ist die Totzeit auf Grund sehr hoher Aktivitätskonzentrationen oder eines hohen Rauschuntergrundes zu hoch, so führt dies zu Datenverlusten. Das *PUR-Intervall* steht für pile-up rejection. Tritt in der Zeit, in welcher ein Impuls registriert wird, ein zusätzlicher Impuls auf, so wird dieser unterdrückt. Eine ausführliche Beschreibung dazu findet sich in dem Abschnitt Totzeitkorrektur. Die gemittelte Energie der Impulse in Sekunden ist in dem Feld t_{Energie} dargestellt. Dieser Parameter bestimmt die Länge des Intervalls, in dem nach dem ausgeführten MWD-Algorithmus die eigentliche Energiebestimmung stattfindet. Das Fenster betrachtet das Maximum und das Minimum des aus dem MWD erzeugten sinusartigen Signals (siehe Abbildung 4.10). Mit dem gesamten Algorithmus wird aus dem Impuls durch Entfaltung der Exponentialfunktionen eine Energie bestimmt.

4.1.5 Totzeitkorrektur

Für jede Messung mit den Vieldraht-Impuls-Ionisationskammern muss eine Totzeitkorrektur erfolgen, um die vom Algorithmus nicht gezählten Impulse zu erfassen. Der Algorithmus benötigt für die Auswertung der Impulse ein Zeitfenster definierter Länge. Über den gesamten Messzeitraum bleibt dieses Zeitfenster gleich. Die Totzeitkorrektur erfolgt nach Abschluss eines Messintervalls, da die Gesamtanzahl der gemessenen und unterdrückten Impulse dann zur Verfügung steht. In Abbildung 4.13 ist exemplarisch eine Folge von Impulsen dargestellt. Zählt der Trigger einen Impuls, so startet in dem Auswertalgorithmus das PUR-Intervall, wie bei Impuls Nummer 1.) abgebildet. Folgt in dem bereits festgelegten Zeitabschnitt des PUR-Intervalls ein zweiter Impuls dicht nach dem ersten Impuls, wie bei 2.) gezeigt, startet der Algorithmus ein neues PUR-Fenster. Für die Auswertung wird sowohl vor dem Impuls als auch nach dem Impuls ein bestimmtes Zeitfenster benötigt, in dem kein weiterer Impuls auftritt. Bei 1.) und 2.) ist diese Bedingung nicht erfüllt. Impuls 3.) folgt kurz vor Abschluss des PUR-Intervalls von Impuls 2.), wird getriggert und ein neues PUR-Intervall öffnet sich. Der dritte Impuls liegt noch zu dicht am zweiten Impuls, da sich die Zeitfenster für das PUR-Intervall überlagern. Somit wird sowohl der zweite als auch der dritte Impuls nicht für die Auswertung registriert. Erst der Impuls 4.) wird getriggert und ausgewertet. In diesem Zeitfenster treten weder Störungen noch weitere Impulse auf, so dass das PUR-Intervall vollständig abgetastet wird. Die Impulse, welche unterdrückt werden, werden gezählt und abgespeichert. Durch Entladungen an der Hochspannungsseite der VIK treten vereinzelt negative Impulse auf. Der Algorithmus wertet einzeln die Impulshöhen der positiven und negativen Impulse aus und speichert diese in einer Textdatei ab. Die obere Abschätzung der gesamten

Totzeit des Algorithmus während eines Messintervalls erfolgt nach der Gleichung:

$$\sum_{\text{Totzeit}} = \left(\sum_{\text{pos.Impulse}} + \sum_{\text{neg.Impulse}} + \sum_{\text{unterdr.Impulse}} \right) \cdot \text{PUR}. \quad (4.5)$$

Alle Impulse, die während einer Messung vom Trigger registriert werden, gehen in die obere Abschätzung der Totzeit mit ein. Eine untere Abschätzung für die Totzeit liefert die Anzahl der registrierten positiven Impulse und die der negativen Impulse multipliziert mit dem PUR-Zeitintervall. Für alle Messungen wurde ein PUR-Intervall von $1,13 \cdot 10^{-2}$ s verwendet. Im Rahmen der Entwicklung der Impulsauswertung wurden unterschiedliche PUR-Intervalle getestet. Diese führten jedoch zu keiner Verbesserung für die Bestimmung der Totzeitkorrektur von Messungen im Low-Level-Bereich.

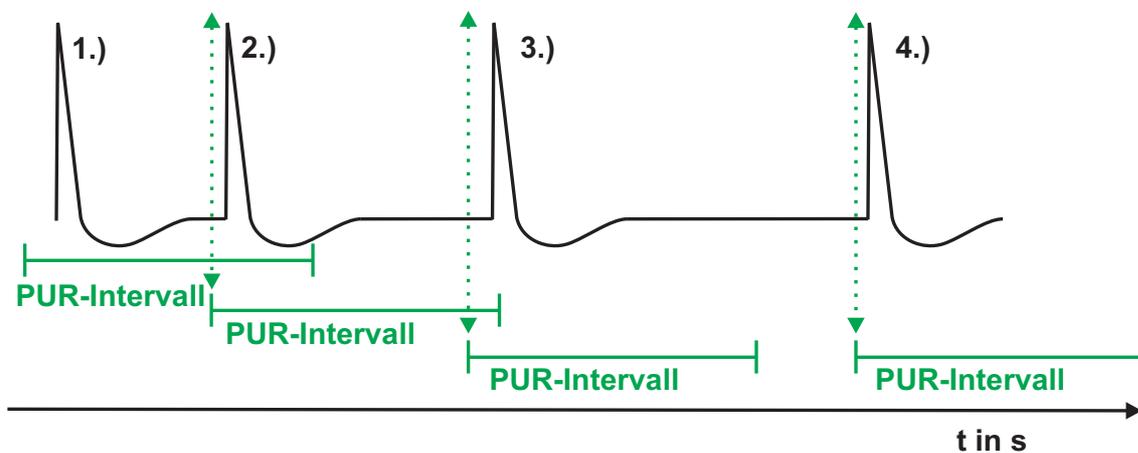


Abbildung 4.13: In der Abbildung ist das Ausführen des PUR-Intervalls in Abhängigkeit von der Zeit dargestellt. Das PUR-Intervall wird gestartet wenn der Trigger einen Impuls registriert. Das PUR-Intervall wird dynamisch in Abhängigkeit von den getriggerten Impulsen über den Messbereich geschoben. Für das positive Spektrum mit den positiven Impulshöhen wird nur der Impuls 4.) ausgewertet. Die Impulse 1.), 2.) und 3.) werden nicht ausgewertet, aber für die Berechnung der Totzeitkorrektur erfasst. Dass die Impulse, wie bei 1.), 2.) und 3.) gezeigt, zeitlich sehr dicht nacheinander auftreten, geschieht während einer Messung im Low-Level-Bereich sehr selten.

Der Faktor m für die Totzeitkorrektur der gemessenen Energiespektren ergibt sich aus der Gleichung

$$m = \frac{1}{1 - n \cdot \text{PUR}}, \quad (4.6)$$

mit

$$n = \frac{\left(\sum_{\text{pos.Impulse}} + \sum_{\text{neg.Impulse}} + \sum_{\text{unterdr.Impulse}} \right)}{t_{\text{Gesamtmesszeit}}}. \quad (4.7)$$

	Anzahl
$\sum_{pos.Impulse+neg.Impulse}$	1 429 787
$\sum_{unterdr.Impulse}$	156 695
$\sum_{Totzeit}$	17 927,25 s
$t_{Gesamtmesszeit}$	426175 s
n	3,72 Counts/s
m	1,04

Tabelle 4.3: Exemplarische Messdaten für die Berechnung der Totzeitkorrektur.

Jeder Kanal des Energiespektrums wird vor der eigentlichen Auswertung mit dem Faktor m der Totzeitkorrektur multipliziert.

Exemplarisch ergeben sich für eine Messung mit der VIK bei einer Aktivitätskonzentration von $c = 300 \text{ Bq/m}^3$ und einem durch Rauscheffekte überlagerten Impulssignal die in Tabelle 4.3 gezeigten Werte. Mit den Gleichungen 4.5, 4.6 und 4.7 werden die aufgeführten Parameter errechnet. Alle Kanäle des Energiespektrums müssen demzufolge mit dem Faktor $m = 1,04$ multipliziert werden, um die Totzeitkorrektur durchzuführen. Die Totzeit wird für jede Messung bestimmt und bei der Auswertung berücksichtigt. In diesem Fall beträgt die Totzeitkorrektur 4 % mit einer relativen Unsicherheit von 0,06 %.

4.1.6 Zusammenfassung der Datenaufzeichnung

In der Abbildung 4.14 ist die Kette von der Entstehung der Impulse bis zur Messdatenauswertung bildlich dargestellt. Die Hochspannung wird über den Vorverstärker angelegt und auf die VIK gegeben. Dort entstehen Signale, die in Form von Strömen im pA-Bereich vom Vorverstärker gemessen und in eine Spannung umgewandelt werden. Die Spannungen durchlaufen einen CR-RC-Filter mit den zwei Zeitkonstanten τ_1 und τ_2 . Dieses analoge Signal wird von der Datenerfassungskarte abgetastet, in ein digitales Signal umgewandelt und dem Algorithmus zur Messwertaufnahme zur Verfügung gestellt. Während der Messwertaufnahme erfolgt die Ausführung des MWD- und MA-Algorithmus, um anschließend die Energie der Impulse zu bestimmen. Im Anschluss an die Energiebestimmung werden die Daten in ein Impulshöhen- bzw. Energiespektrum eingeteilt. Nach Abschluss der Messwertaufnahme erfolgt die Berechnung der Totzeitkorrektur und die Multiplikation mit dem Kalibrierfaktor. Aus dem erhaltenen Datensatz wird die Aktivitätskonzentration bestimmt.

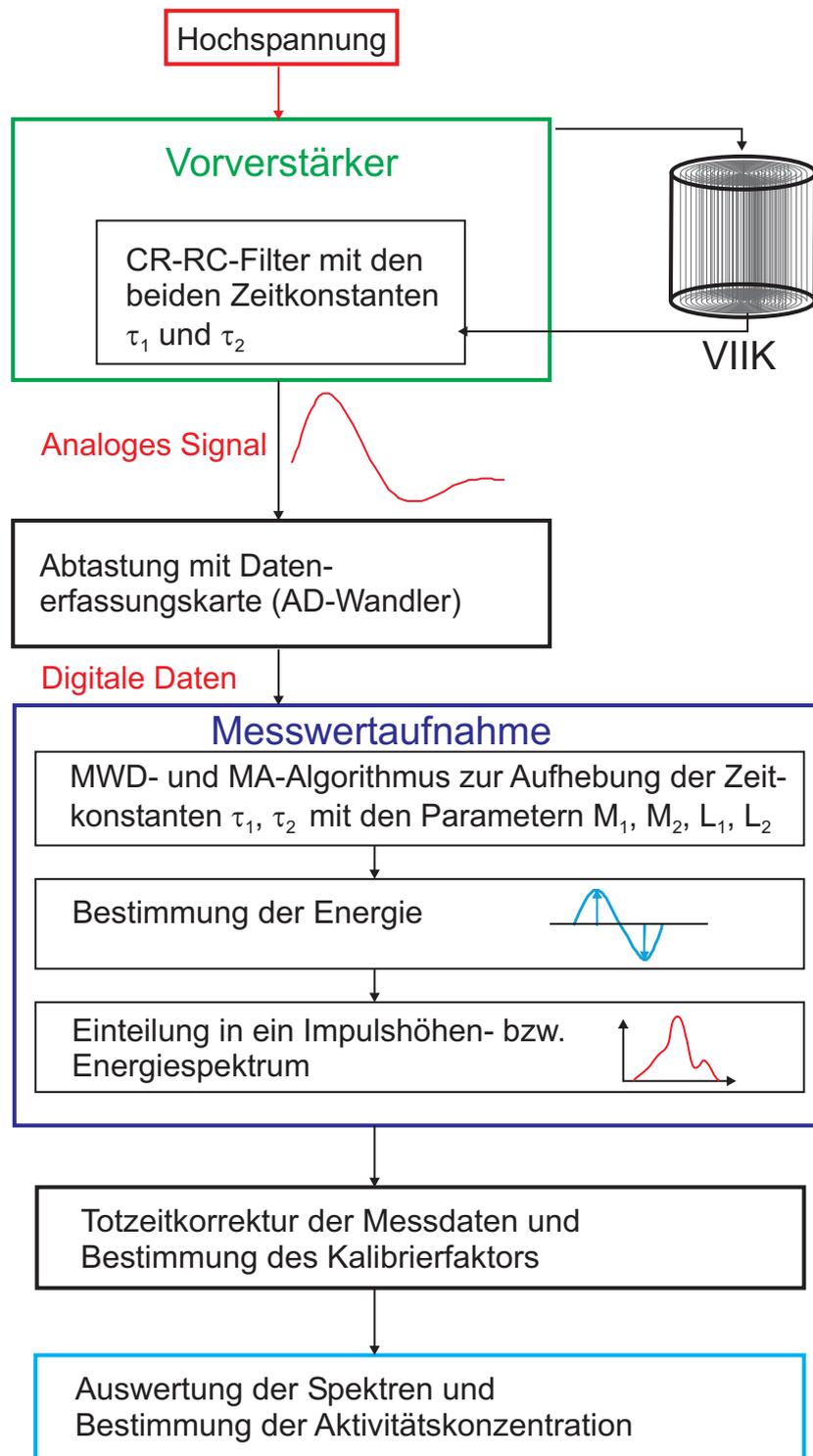


Abbildung 4.14: Die Übersicht stellt schematisch den Ablauf der Messwertaufnahme und Datenauswertung dar.

4.2 Messung der Radon-Aktivitätskonzentration mit der VIIK

Um die Radon-Aktivitätskonzentration zu bestimmen, werden die Impulshöhen ausgewertet und in ein α -Spektrum sortiert. Nachfolgend wird für die Messungen nur das Kammermodell VIIK „hoch“ genutzt, da bei diesem Modell das Signal-Rausch-Verhältnis am besten ist.

4.2.1 Erzeugung und Auswertung von α -Spektren

An der LL-RRK werden mit der VIIK „hoch“ Messungen bei konstanten Referenzatmosphären unterschiedlicher Aktivitätskonzentration durchgeführt, die durch die in Kapitel 3.3 vorgestellten Emanationsquellen erzeugt werden. Für jede Messung wird durch Auswertung mit dem im Abschnitt 4.1.4 beschriebenen Auswertalgorithmus ein α -Spektrum erstellt.

Die Abbildung 4.15 zeigt exemplarisch die Zählrate pro Sekunde im aktiven Detektorvolumen von 10 L in Abhängigkeit von der α -Energie für eine Messung mit der VIIK „hoch“. An das Energiespektrum werden symmetrische Peaks mit den Werten der α -Energien für Rn-222 und dessen Folgeprodukte Po-218 und Po-214 in Form von Gaußfunktionen angepasst. Rn-222 und Po-218 befinden sich bei einer konstanten Aktivitätskonzentration im Gleichgewicht, so dass zwischen den Peaks für die Fläche der Gaußfunktion ein festes Verhältnis von Fläche(^{218}Po) = 0,5 · Fläche(^{222}Rn) angenommen wird. Befindet sich das positiv geladene Po-218 auf den Elektrodenstäben der VIIK und zerfällt dort unter Aussendung von α -Teilchen, so trägt nur die Energie des α -Teilchens zur Messung bei, welches in das aktive Detektorvolumen emittiert wird und nicht in den Elektrodenstab. Daher wird für die Gaußfunktion von Po-218 der Flächeninhalt im Vergleich zu dem von Rn-222 um 50 % reduziert, was dem Raumwinkel entspricht. Aus den drei Gaußfunktionen wird eine Summenfunktion erstellt. Die Summenfunktion bildet den Verlauf des gemessenen Energiespektrums ab. Die Zählrate unterhalb von 4 MeV setzt sich zusammen aus einer unvollständigen Energieabgabe der α -Teilchen im Detektorvolumen, aus Rauscheffekten und aus der Kontamination des Detektors mit Pb-210.

Das gesamte Energiespektrum ist in 256 Kanäle unterteilt, die bei der bevorzugten Auswertmethode eine energetische Breite von 0,08735 MeV haben. Eine größere Anzahl an Kanälen bzw. ein kleinerer energetischer Bereich führen zu keiner weiteren Verbesserung der Auflösung, weshalb 256 Kanäle als Standardeinteilung definiert werden. Mit diesem Auswertalgorithmus können Impulse bis zu einer Energie von 22 MeV in einem α -Energiespektrum dargestellt werden. Die Abbildung 4.16 zeigt die Kanalnummer in Abhängigkeit von der Energie. Die Kanalnummer ergibt sich für jedes Nuklid aus der angepassten Gaußkurve, die Energie des Nuklids folgt aus den Daten der Monographie 5 des BIPM [43].

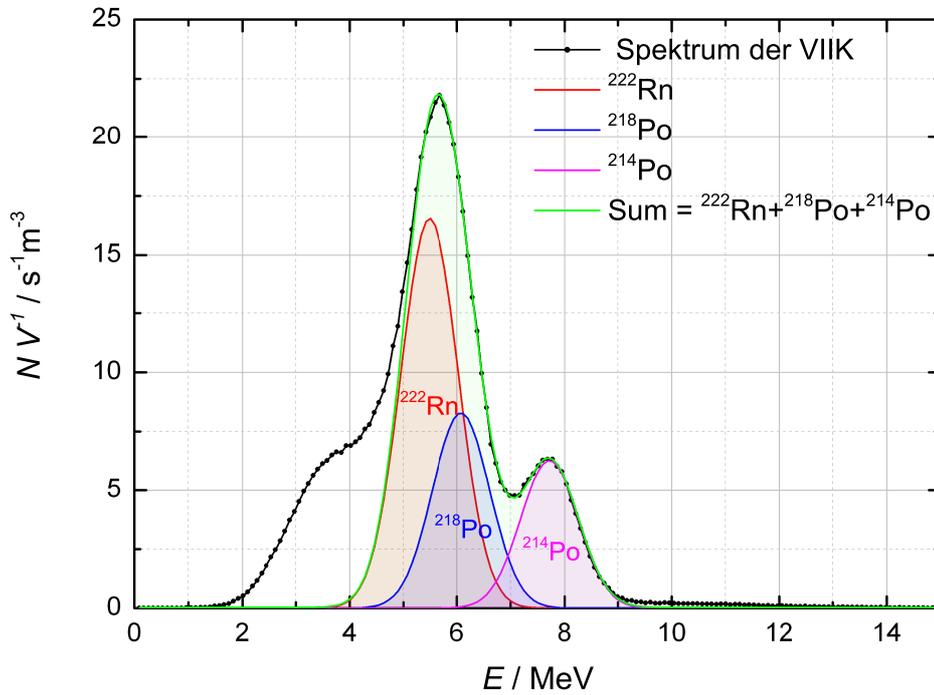


Abbildung 4.15: α -Energiespektrum gemessen mit der VIK „hoch“ in der LL-RRK. Zu sehen ist die Zählrate pro Sekunde bei einem aktiven Detektorvolumen von 10 L in Abhängigkeit von der Energie für den Bereich von 0 bis 15 MeV. An das Energiespektrum wird eine Gaußverteilung für ^{222}Rn (rot), ^{218}Po (blau) und ^{214}Po (pink) angepasst. Für diese drei Peaks wird die Summenfunktion (grün) gebildet und ebenfalls dargestellt. Der niederenergetische Anteil im Spektrum setzt sich zusammen aus unvollständiger Energieabgabe der α -Teilchen im Detektorvolumen, aus Rauscheffekten und aus der Kontamination des Detektors mit ^{210}Pb .

An die aufgetragenen Werte der α -Energie für Rn-222, Po-218 und Po-214 wird eine lineare Funktion der Form

$$\text{Kanalnummer} = a + b \cdot E_{\alpha} \quad (4.8)$$

angepasst, um eine Energiekalibrierung durchzuführen. Um mit der VIK die α -Energien von Radon-220-Referenzatmosphären zu bestimmen und die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektor zu überprüfen, werden mit den Parametern der Energiekalibrierung die Kanalnummern der aus der Rn-220-Zerfallsreihe stammenden Nuklide bestimmt. In der Tabelle 4.4 ist eine Übersicht der mit der VIK gemessenen Nuklide vorgestellt, die sich in die α -Energien der Rn-222-Zerfallsreihe und die der Rn-220-Zerfallsreihe gliedert.

Zur Messung der α -Energien der Rn-220-Zerfallsreihe wird mit einer Thorium-228-Emana-

Nuklid	E_α in MeV	P_α in %	$T_{1/2}$
Auszug aus der Zerfallsreihe von Rn-222			
^{222}Rn	5,4895 4,986	99,92 0,078	3,825 d
^{218}Po	6,0024	100	3,05 m
^{214}Po	7,6869	99,99	164 μs
Auszug aus der Zerfallsreihe von Rn-220			
^{220}Rn	6,2881 5,747	99,89 0,114	55,6 s
^{216}Po	6,7783	100	0,15 s
^{212}Bi	6,0508 6,0899	70,2 26,8	60,60 m
^{212}Po	8,785	100	0,3 μs

Tabelle 4.4: Auszug aus den Zerfallsreihen von Radon-222 und Radon-220. Dargestellt sind die α -Energie, die Emissionswahrscheinlichkeit und die Halbwertszeit.

tionsquelle eine Referenzatmosphäre erzeugt. Die Abbildung 4.17 zeigt das von der VIK gemessene α -Energiespektrum. Mit den Werten aus der Energiekalibrierung werden für die Nuklide Rn-220, Po-216, Bi-212 und Po-212 Gaußfunktionen an das Spektrum angepasst. Aus den Gaußfunktionen der einzelnen Nuklide wird eine Summenfunktion gebildet. Bei dieser Messung zeigt sich ebenfalls, dass im Bereich unterhalb von 4,5 MeV unvollständige Energieabgaben der α -Teilchen zu der Zählrate beitragen. Durch die Messungen bei unterschiedlichen Referenzatmosphären mit unterschiedlichen Nukliden wird das Ansprechvermögen der VIK im Energiebereich bis 10 MeV überprüft. Es ist gezeigt, dass die VIK sowohl für Messungen einer Rn-222-Referenzatmosphäre als auch für Messungen einer Rn-220-Referenzatmosphäre eingesetzt werden kann.

Mit drei unterschiedlichen Emanationsquellen werden an der LL-RRK stabile Radon-222-Referenzatmosphären erzeugt. In Abbildung 4.18 sind die für einen Tag mit der VIK „hoch“ gemessenen Spektren dargestellt. Die Spektren der Emanationsquelle 2 mit der Aktivitätskonzentration c_2 und die der Emanationsquelle 3 mit der Aktivitätskonzentration c_3 werden auf das Maximum des Spektrums der Emanationsquelle 1 mit der Aktivitätskonzentration c_1 normiert. Im Gleichgewicht herrscht zwischen den Flächen der Gaußpeaks von Rn-222 und Po-218 ein festes Verhältnis, wodurch sich dieses während der Messungen nicht ändert. Für die Auswertung der Zählrate und die Bestimmung der Aktivitätskonzentration wird ein Energiebereich um das Maximum des Summenpeaks im Spektrum gewählt. Es gilt:

$$c_{\text{Rn-222}} \sim c_{\text{Rn-222}} + c_{\text{Po-218}}. \quad (4.9)$$

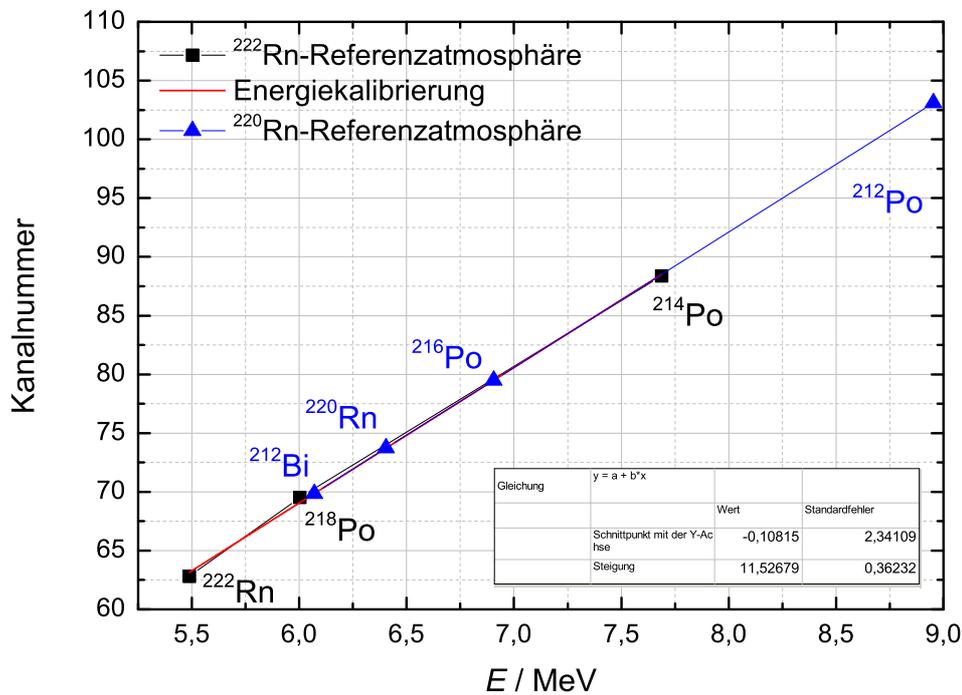


Abbildung 4.16: Energiekalibrierung der VIK „hoch“. Mit den α -Energien der gemessenen Rn-222-Referenzatmosphäre werden die Kanäle der einzelnen Nuklide der Rn-220-Zerfallsreihe bestimmt.

Es ist nicht nötig die Fläche der einzelnen Peaks für jedes Spektrum zu bestimmen, da die Zählrate für Rn-222 proportional der Summe der Zählrate von Rn-222 und Po-218 ist. Durch die Summation der beiden Zählraten wird die Statistik verbessert und kleinere Unsicherheiten werden erreicht. Die Abbildung zeigt, dass die Form des Spektrums unabhängig ist von der jeweiligen Aktivitätskonzentration. Um sicherzustellen, dass Auflösungsverluste bedingt durch unterschiedliche Betriebsarten der VIK keinen Einfluss haben, wird für die Emanationsquelle 1 und 2 jeweils eine Messung in einem Kreislauf aus Emanationsquelle, Pumpe, Referenzvolumen und VIK durchgeführt. Eine schematische Darstellung des Messaufbaus ist unter Abbildung 4.20 a) gezeigt. Bei der Messung mit der Emanationsquelle 3 wird von dem Referenzvolumen ausgehend ein Bypass gelegt, wie in Abbildung 4.20 b) gezeigt. Die VIK wird mit einem Volumenstrom von 0,3 L/min durchpumpt, während über der Emanationsquelle ein Volumenstrom von 1 L/min erzeugt wird. Für die Emanationsquelle 3 mit der Aktivitätskonzentration c_3 ist zwar im Bereich von 7 MeV eine zwölfprozentige Zählraten-erhöhung sichtbar, dies bewirkt aber insgesamt nur eine Änderung von 0,2 % im gesamten Spektrum. Somit können betriebsartbedingte Auflösungsverluste akzeptiert werden, falls dies die Kalibrieranordnung erforderlich macht.

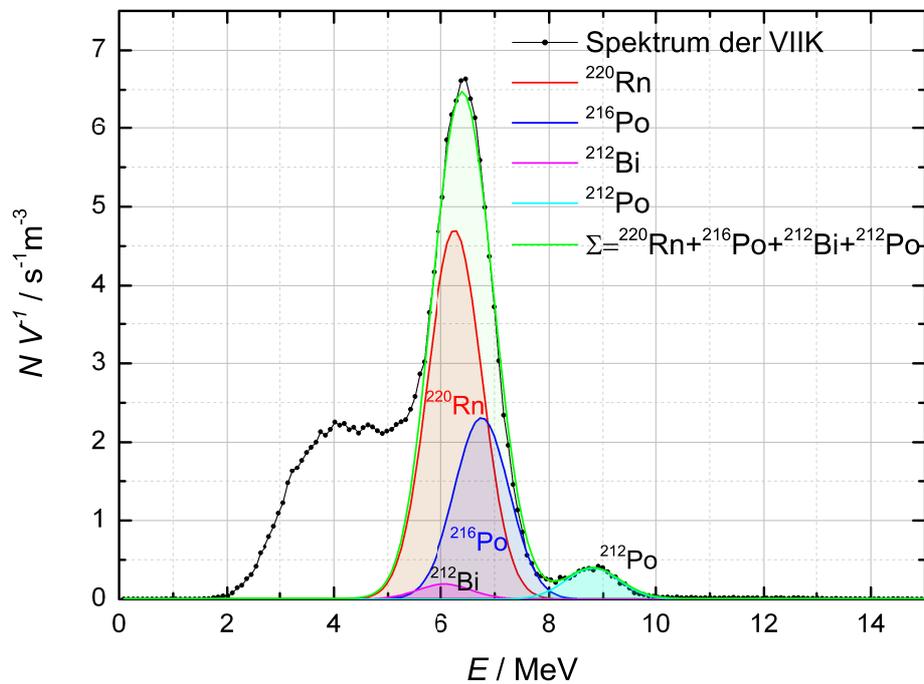


Abbildung 4.17: Gemessenes α -Energiespektrum einer Rn-220-Referenzatmosphäre mit der VIKK „hoch“. An die Zählrate pro Sekunde im aktiven Detektorvolumen von 10 L werden die Peaks für Rn-220 (rot), Po-216 (dunkelblau), Bi-212 (cyan) und Po-212 (pink) in Form von Gaußverteilungen angepasst. Die Summenfunktion (grün) ergibt sich aus den vier Peaks der einzelnen Nuklide. Durch unvollständige α -Energieabgabe im Detektorvolumen und Rauscheffekte wird unterhalb von 5 MeV eine Zählrate gemessen.

Für die drei unterschiedlichen Emanationsquellen wird mit der VIKK im Abstand von zehn Minuten jeweils ein Energiespektrum gemessen und ausgewertet. In den Spektren werden die gezählten und verarbeiteten positiven Impulse dargestellt. Um eine Anzahl der Impulse pro Volumen zu erhalten, wird für den definierten Bereich von Kanal 58 bis Kanal 73 des α -Energiespektrums die Impulsanzahl aufsummiert und durch das aktive Volumen geteilt. Der Bereich wird so gewählt, dass nur Rn-222- und Po-218-Impulse zur Zählrate beitragen. Für jeden zehn-Minuten-Abschnitt ergibt sich eine Zählrate pro Volumen, die in der oberen Abbildung 4.19 in Abhängigkeit von der Zeit gezeigt ist. In die Darstellung geht die Totzeitkorrektur der Messwerte mit ein, der Kalibrierfaktor für die VIKK wurde noch nicht betrachtet. Vergleichend dazu ist in der unteren Abbildung 4.19 die gemessene Aktivitätskonzentration eines Prüflings vorgestellt. Durch die Messung mit der VIKK ist der Nachweis geführt, dass die Schwankungen in der Anzeige des Prüflings ausschließlich auf dessen begrenztes Nachweisvermögen zurückgehen. Die Emanationsquelle wird über den gesamten Messzeitraum

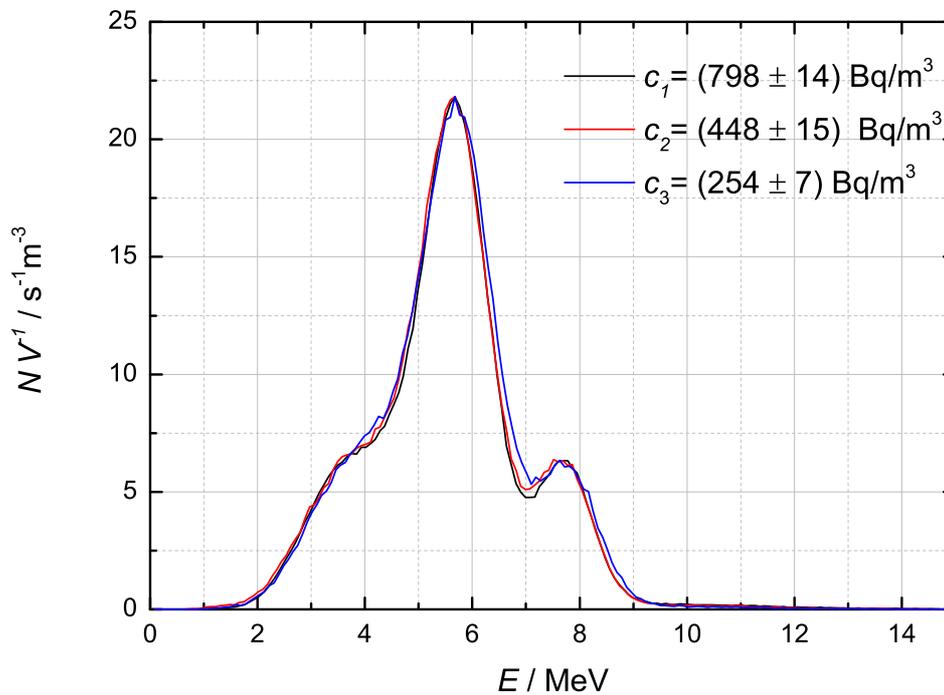


Abbildung 4.18: Zählrate in Abhängigkeit von der Energie gemessen mit der VIKK „hoch“. Die Spektren der Emanationsquellen 2 und 3 mit den Aktivitätskonzentrationen c_2 und c_3 wurden auf das Maximum der Zählrate der Emanationsquelle 1 (Aktivitätskonzentration c_1) normiert. Durch unterschiedliche Betriebsarten der VIKK ergibt sich für die Messung der Emanationsquelle 3 ein minimaler Verlust der Auflösung der Spektren.

γ -spektrometrisch vermessen. Somit wird gewährleistet, dass das gewählte Auswertemodell unter der Annahme einer konstanten Aktivitätskonzentration ($c_A = const.$) erfüllt ist.

Durch verschiedene Messungen ist somit sichergestellt, dass die Schwankungen der Aktivitätskonzentration in der Anzeige des Prüflings ausschließlich statistisch sind. Der Prüfling zeichnet für ein Zeitintervall von zehn Minuten jeweils einen Messwert auf. Deshalb wird zuerst eine Mittelwertbildung der Messwerte über den gesamten Zeitbereich durchgeführt. In Abbildung 4.21 ist die gemessene Aktivitätskonzentration sowie die Mittelwertbildung für unterschiedliche Zeitintervalle mit der dazugehörigen Standardabweichung dargestellt. Beim ersten Auswerteschritt wird eine Mittelung über alle in den 80 Stunden erhaltenen Messwerte durchgeführt. Nachfolgend wird jeweils fortlaufend über den Bereich von einer Stunde, vier Stunden und zehn Stunden erst eine Glättung der Messwerte vorgenommen um daraus einen gleitenden Mittelwert zu bestimmen. Aus diesen Mittelwerten für die einzelnen Zeitintervalle (1 h, 4 h und 10 h) wird für die Messzeit von 80 Stunden der Gesamtmittelwert

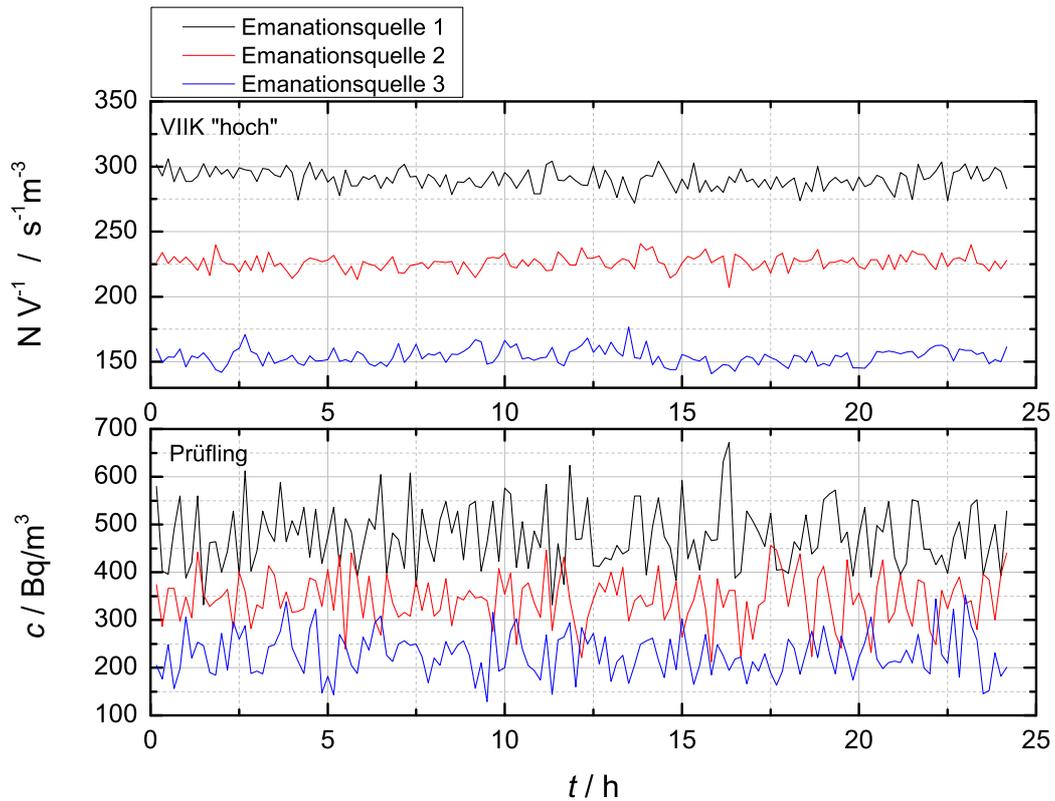
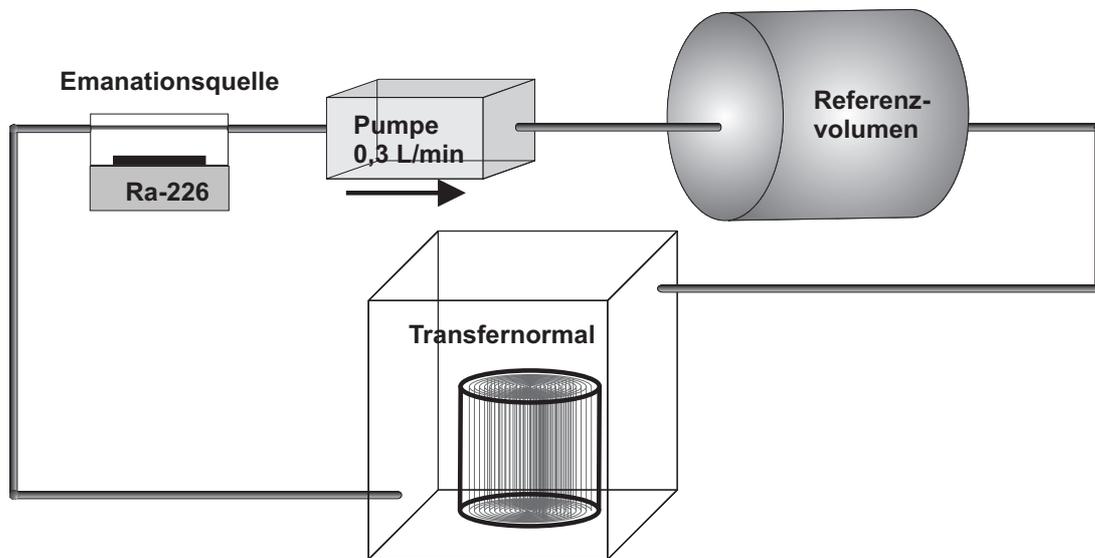


Abbildung 4.19: Gemessene Aktivitätskonzentration in Abhängigkeit von der Zeit für 3 unterschiedliche Emanationsquellen. Die obere Abbildung zeigt die Messwerte mit der VLIK „hoch“, die untere Abbildung zeigt die Messwerte des Prüflings. Die Messwerte der VLIK wurden ermittelt durch Bildung der Summe der Zählrate der Kanäle 58 bis 73 für einen Zeitbereich von zehn Minuten. Das aktive Volumen des Detektors und die Totzeitkorrektur wurden berücksichtigt.

mit der Standardabweichung gebildet. Die Messwerte des Prüflings können folglich über ein festes Zeitintervall gemittelt werden, um die statistischen Schwankungen der Anzeige des Prüflings zu minimieren.

a)



b)

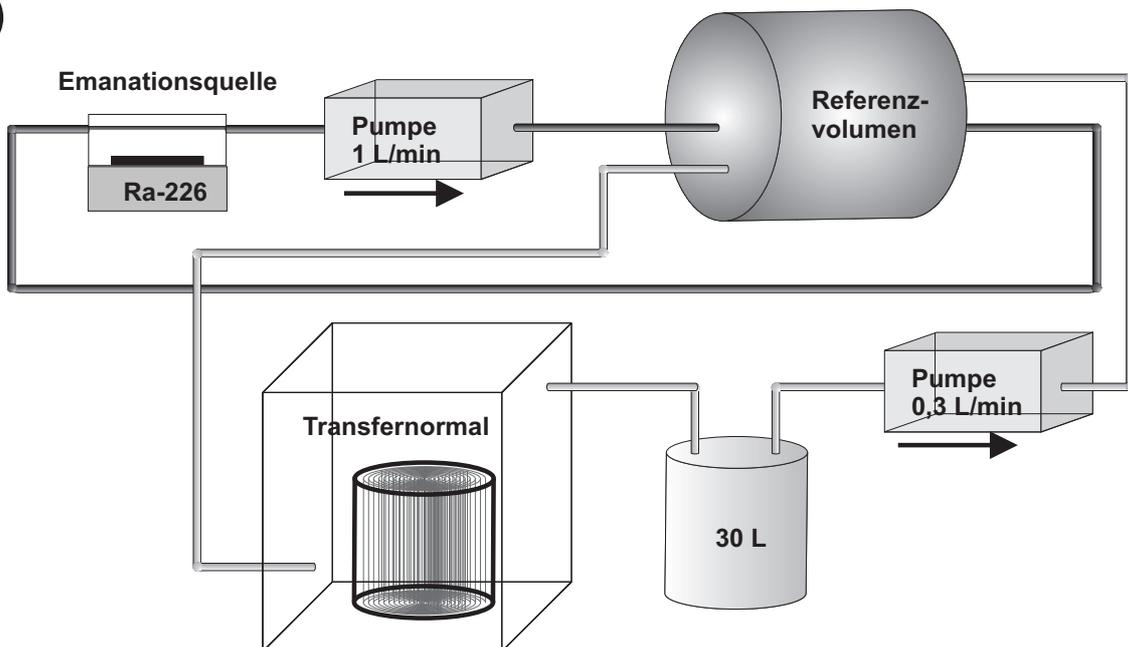


Abbildung 4.20: Mögliche experimentelle Aufbauten für den Einsatz der VIK als TransfERNormal. Variante a) direkt in den Aktivitätskreislauf, Variante b) im Bypass zum Aktivitätskreislauf. In beiden Fällen ist das Spektrum der VIK stabil. Eine leichte Erhöhung des Rauschanteils im Fall b) führt im Rahmen der Messunsicherheiten zu keiner signifikanten Änderung bei der Bestimmung der Aktivitätskonzentration, so dass eine Anpassung der Auswertung nicht durchgeführt werden muss.

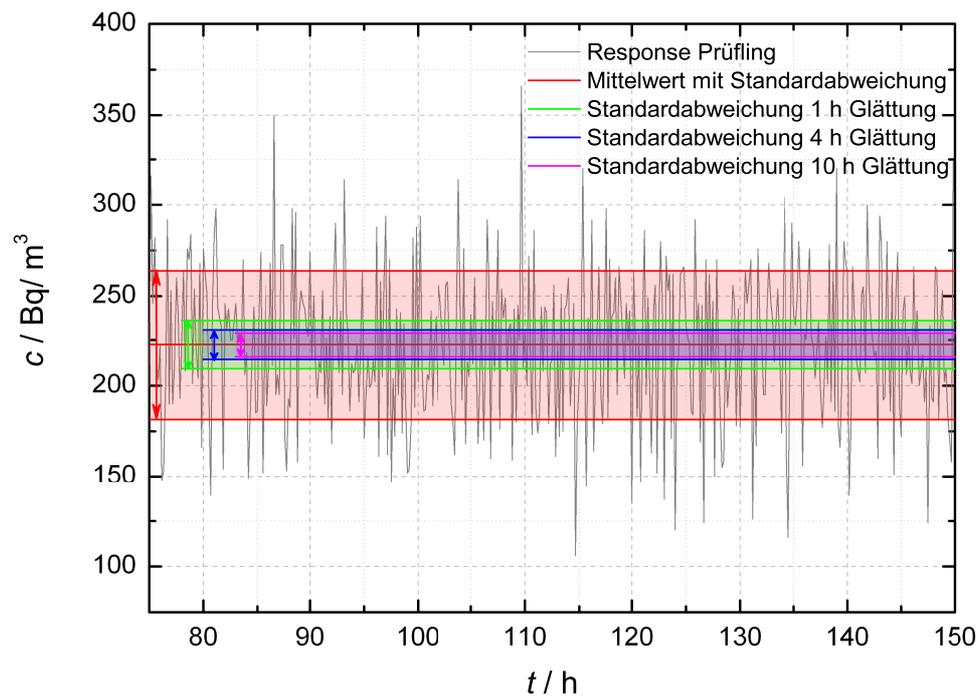


Abbildung 4.21: Gemessene Aktivitätskonzentration eines Prüflings in Abhängigkeit von der Zeit und der daraus resultierende Mittelwert für eine Gesamtmesszeit von 80 Stunden. Für zeitlich definierte Intervalle (eine Stunde, vier Stunden und zehn Stunden) wird eine Glättung der Werte durchgeführt, in dem ein gleitender Mittelwert gebildet wird. Aus den Mittelwerten der einzelnen Zeitintervalle wird der Gesamtmittelwert für die Messzeit von 80 h bestimmt. Die daraus resultierende Standardabweichung ist für alle Zeitintervalle dargestellt (eine Stunde (grün), vier Stunden (blau) und zehn Stunden (pink)).

Kapitel 5

Kalibrierung der VIK

5.1 Kalibrierung der VIK

Die Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer wird mit einem Primärnormal kalibriert und steht dann für eine Kalibrierung als Sekundärnormal zur Verfügung.

5.1.1 Kalibrierung der VIK mit einem Primärnormal

Die Kalibrierung der VIK „hoch“ mit einem Radon-Aktivitätsnormal erfolgt in der Radon-normal-Kammer ($V_{RNK} = 21 \text{ m}^3$). Dort sind die Umweltparameter Temperatur und Feuchte einstellbar. Die Temperatur kann in einem Bereich von -40 °C bis $+60 \text{ °C}$ geregelt werden, die Feuchte kann von $10 \text{ % rel. Feuchte}$ bis zu $95 \text{ % rel. Feuchte}$ im Temperaturbereich von $+10 \text{ °C}$ bis $+60 \text{ °C}$ eingestellt werden. Damit können zusätzliche Tests der VIK bezüglich der Stabilität bei Temperatur- und Feuchteschwankungen durchgeführt werden. Für die Kalibrierung wird die VIK in das Referenzvolumen gebracht und mit dem Radon-Aktivitätsnormal beaufschlagt. In Abhängigkeit von der Zeit wird die Zählrate pro Sekunde im aktiven Volumen der VIK gemessen. In der RNK werden während der Messung die Parameter Druck, Temperatur und Feuchte aufgezeichnet.

Damit die VIK „hoch“ als sekundäres Normal eingesetzt werden kann, muss diese vorerst mit einem Primärnormal kalibriert werden. Die VIK hat weder eine direkte Messwertanzeige, noch verfügt sie über eine Werkskalibrierung, da es sich bei der VIK um einen PTB-Eigenbau handelt. Der Kalibrierfaktor wird direkt bestimmt bezüglich der in einem ausgewählten Energiebereich gemessenen Zählrate. Da der Zwischenschritt einer Werkskalibrierung entfällt, weicht der Kalibrierfaktor stark von 1 ab. Relevant für die Kalibrierung ist aber ausschließlich die erzielte Unsicherheit des Kalibrierfaktors.

Für die Kalibrierung wird im Abstand von zehn Minuten ein α -Spektrum aus den mit der VIK aufgenommenen Daten erzeugt. Wie in Abschnitt 4.2 beschrieben, werden die Kanäle 58 bis 73 aufsummiert, um die Summe der Zählrate von Rn-222 und Po-218 zu ermitteln. Für jedes α -Spektrum wird eine Totzeitkorrektur vorgenommen. In der Abbildung 5.1 ist die

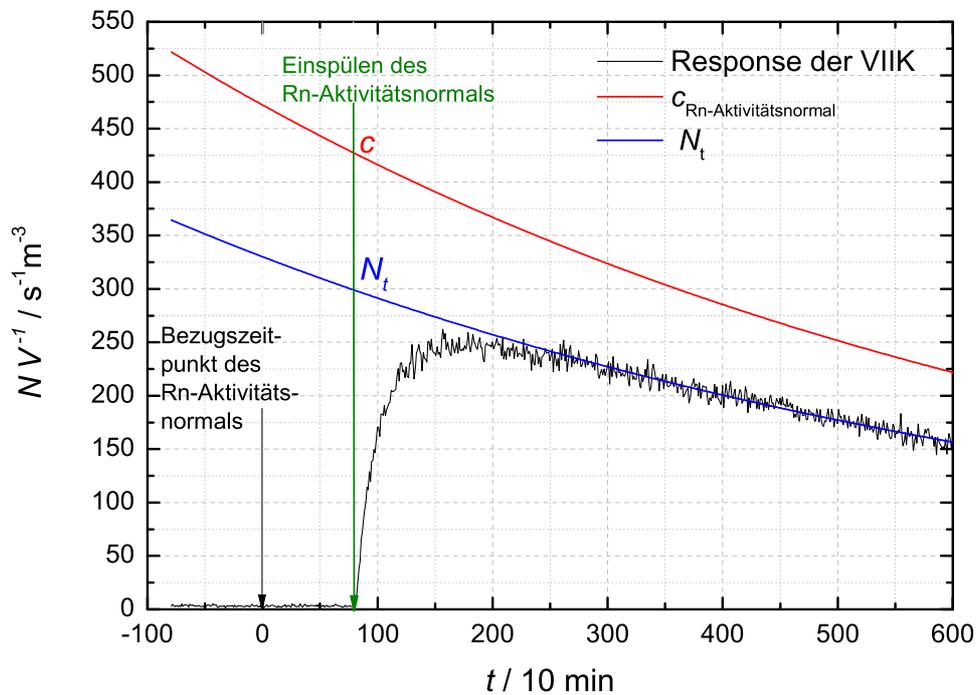


Abbildung 5.1: Dargestellt ist die Zählrate im Volumen der VIK „hoch“ für die Primärkalibrierung. Der Bezugszeitpunkt des Radon-Aktivitätsnormals sowie der Zeitpunkt des Einspülens sind gekennzeichnet. Die Zerfallsgleichung für den Zerfall von Rn-222 wurde an die Messwerte der VIK angepasst. Hierbei ergibt sich die experimentelle Halbwertszeit λ_e . Für das Radon-Aktivitätsnormal wurde die Zerfallsgleichung mit dem Literaturwert der Halbwertszeit bestimmt. Die Zählrate der VIK ist bereits totzeitkorrigiert.

Summe der Zählrate im aktiven Volumen für die Messung mit der VIK „hoch“ für die zehnmütigen α -Spektren vorgestellt. Der Bezugszeitpunkt für die im Kalibrierschein festgelegte Aktivität des Radon-Aktivitätsnormals ist in der Darstellung gekennzeichnet und wurde zu $t = 0$ gesetzt. Für das Einspülen des Radon-Aktivitätsnormals in die Radonnormal-Kammer werden die Ventile des Edelstahlzylinders geöffnet und der Zylinder wird zehn Minuten lang durchpumpt, um die Radonaktivitätskonzentration vollständig in der Radonnormal-Kammer zu verteilen. Der Zeitpunkt des Einspülens ist $t_c = 72,2 \cdot 10$ min. Vor dem Einspülen des Radon-Aktivitätsnormals wird der Untergrund in der Radonnormal-Kammer über einen Zeitraum von 24 Stunden gemessen. Von diesem Messzeitraum wird der Mittelwert gebildet und die Unsicherheit bestimmt. An die Zählrate der VIK wird ab dem Zeitpunkt $t > t_c + 24$ h die Zerfallsgleichung angepasst. Der Schnittpunkt der Zerfallsgleichung mit dem Zeitpunkt des Einspülens ist als N_t gekennzeichnet und dient zur Berechnung des Kalibrierfaktors. Alle aus den Messdaten der VIK ermittelten Parameter sind Zählraten im aktiven Detektor-

volumen. Für das Abklingen des Radon-Aktivitätsnormals wurde der Verlauf der Aktivitätskonzentration mit dem Literaturwert für die Halbwertszeit berechnet. Der Schnittpunkt zum Zeitpunkt des Einspülens des Radon-Aktivitätsnormals ist abgebildet und mit c bezeichnet.

Der Kalibrierfaktor k_r für die Anzeige der VIIK errechnet sich aus den in Tabelle 5.1 dargestellten Werten mit der Gleichung

$$k_r = \frac{c}{N_t - N_{tbg}}. \quad (5.1)$$

Mit der in Kapitel 3.2 aufgeführten Gleichung 3.1 wird die Aktivitätskonzentration c zum Zeitpunkt des Einspülens ermittelt. Die Zählrate der VIIK zum Zeitpunkt des Einspülens ergibt sich über die Gleichung

$$N_t = N_{ttc} \cdot e^{(-\lambda_e \cdot (t - t_c))} + N_{tbg}. \quad (5.2)$$

Die Berechnung des Kalibrierfaktors erfolgt gemäß dem GUM [29]. Bei der vorgestellten Kalibrierung muss die Zeitachse des Systems auf den Bezugszeitpunkt des Radon-Aktivitätsnormals angepasst werden. Für diese Kalibrierung ergibt sich ein Kalibrierfaktor von $k_r = 1,44 \pm 0,03$. Angegeben ist die erweiterte Messunsicherheit, die sich aus der Standardmessunsicherheit durch Multiplikation mit dem Erweiterungsfaktor $k = 2$ ergibt und gemäß dem GUM [29] ermittelt wurde. Die exakte Auswertung liefert eine Aktivitätskonzentration in der Einheit Bq/m^3 .

Die einzelnen, in der Tabelle 5.1 gelisteten Parameter für die Kalibrierung sind:

V	: Kalibriervolumen
λ	: Zerfallskonstante
$T_{1/2}$: Halbwertszeit [43]
c	: Aktivitätskonzentration des Rn-Aktivitätsnormals zum Zeitpunkt des Einspülens
A	: Aktivität des Rn-Aktivitätsnormals zum Bezugszeitpunkt
N_{ug}	: Zählrate im Volumen der VIIK in der RNK vor der Kalibrierung
t_c	: Zeitpunkt des Einspülens
N_t	: Zählrate im Volumen der VIIK zum Zeitpunkt t_c
N_{ttc}	: Fitparameter bei der Auswertung der Anzeige der VIIK
λ_e	: experimentelle Zerfallskonstante
N_{tbg}	: Zählrate im Volumen der VIIK für den Untergrund
k_r	: Kalibrierfaktor.

Die Abbildung 5.2 zeigt vier α -Energiespektren der VIIK während der Kalibrierung mit dem Radon-Aktivitätsnormal. Für jedes α -Spektrum wurde zur deutlicheren Darstellung ein Zeitintervall von einer Stunde gewählt. Dazu wurden jeweils sechs zehn-Minuten-Spektren aufsummiert. Die Aktivitätskonzentration für die jeweiligen Messabschnitte wurde der Abbildung 5.1 entnommen und mit dem errechneten Kalibrierfaktor k_r multipliziert. Im Referenzvolumen sinkt durch den radioaktiven Zerfall die Aktivitätskonzentration, so dass mit fortschreitender Messzeit ebenfalls die Zählrate der VIIK sinkt.

Größe	Wert	Standardmess- unsicherheit	relative Unsicherheit	Beitrag zur Unsicherheit
V	21,257 m ³	0,017 m ³	0,08 %	0,6 %
λ	$1,2589308 \cdot 10^{-3}$ 1/10min	$98,8 \cdot 10^{-9}$ 1/10min	0,008 %	
$T_{1/2}$	3,823500 d	$300 \cdot 10^{-6}$ d	0,008 %	0,0%
c	426 Bq/m ³	4 Bq/m ³	1,0 %	
A	10000 Bq	100 Bq	0,01 %	95,8%
N_{ug}	$0,32 \text{ s}^{-1}\text{m}^{-3}$	$0,05 \text{ s}^{-1}\text{m}^{-3}$	16,2 %	0,0%
t_c	72,200 10min	0,577 10min	0,8 %	0,5%
N_t	$299,0 \text{ s}^{-1}\text{m}^{-3}$	$0,9 \text{ s}^{-1}\text{m}^{-3}$	0,3 %	
N_{ttc}	$296,300 \text{ s}^{-1}\text{m}^{-3}$	$0,537 \text{ s}^{-1}\text{m}^{-3}$	0,2 %	3,2%
λ_e	$1,26 \cdot 10^{-3}$ 1/10min	$0,02 \cdot 10^{-3}$ 1/10min	1,9 %	0,0%
N_{tbg}	$2,7 \text{ s}^{-1}\text{m}^{-3}$	$0,7 \text{ s}^{-1}\text{m}^{-3}$	25,4 %	0,0%
k_r	1,438	0,015	1,1 %	

Tabelle 5.1: Unsicherheitsbudget für die Kalibrierung der VIK „hoch“. Die erzeugte Referenzatmosphäre aus dem Radon-Aktivitätsnormal und dem Volumen der RNK ist das Primärnormal. Die Zählraten der VIK sind bereits totzeitkorrigiert und für die Aktivität des Radon-Aktivitätsnormalen wurde der Bezugszeitpunkt angepasst.

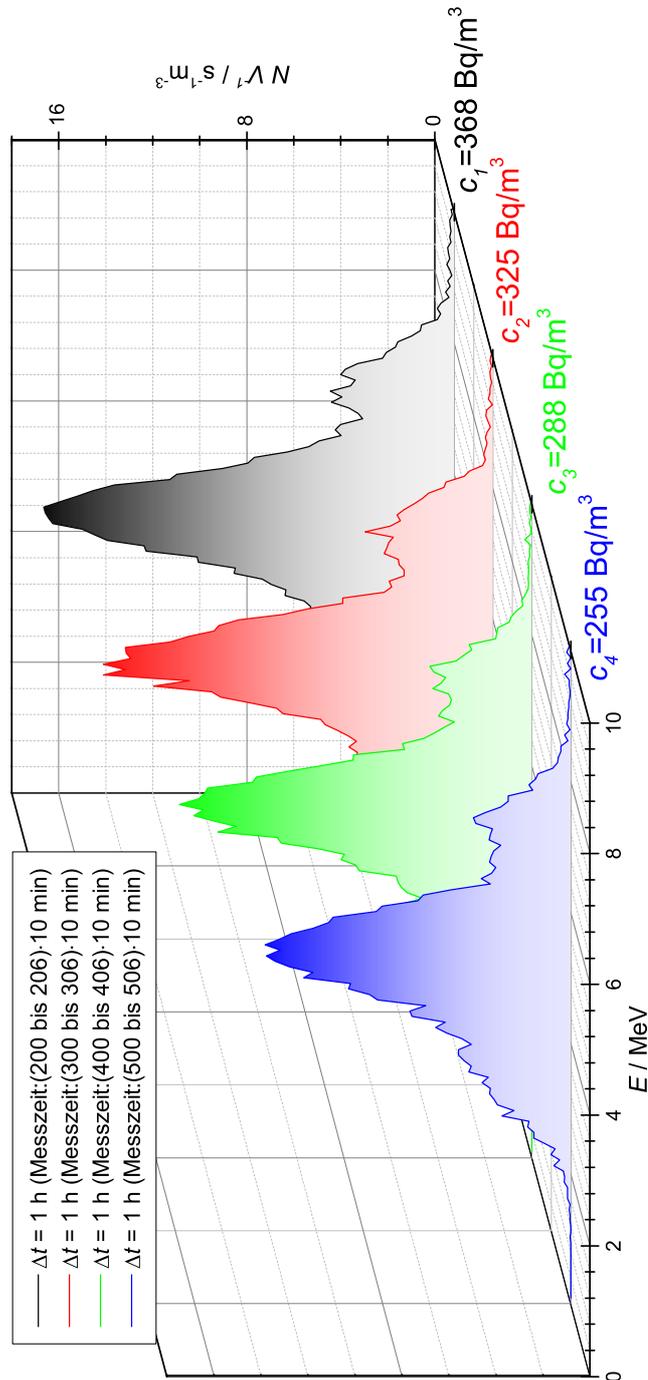


Abbildung 5.2: α -Energiespektren der VIK „hoch“ für jeweils eine Stunde Messzeit während der Kalibrierung mit einem Primärnormal. Die Messzeit der einzelnen Spektren ist in Klammern angegeben und entspricht dem zeitlichen Verlauf aus Abbildung 5.1, aus der auch die Aktivitätskonzentrationen für den jeweiligen Messabschnitt entnommen wurden. Mit fortschreitender Messzeit sinkt durch den radioaktiven Zerfall die Aktivitätskonzentration im Referenzvolumen.

5.1.2 Kalibrierung mit einem Sekundärnormal

Nach der Primärkalibrierung der VIKK „hoch“ in einer Referenzatmosphäre steht die VIKK als Sekundärnormal zur Verfügung. Das Sekundärnormal dient zur Bewahrung der Einheit in der PTB und somit wird die VIKK „hoch“ nun als Referenzmesssystem eingesetzt. Sowohl der Prüfling als auch die VIKK befinden sich für die Sekundärkalibrierung in einem geschlossenen System. Dazu wird der in der Abbildung 4.20 b) gezeigte Messkreislauf aufgebaut. Der Prüfling befindet sich im Referenzvolumen, während die VIKK über einen Bypass an den Aktivitätskreislauf angekoppelt ist. Mit der Emanationsquelle Ra-226 2011-1777 wird an der LL-RRK eine konstante Referenzatmosphäre erzeugt, so dass die Kalibrierung über einen beliebig langen Zeitraum durchgeführt werden kann, um möglichst kleine Messunsicherheiten zu erhalten.

Größe	Wert	Standardmess- unsicherheit	relative Unsicherheit	Beitrag zur Unsicherheit
k_r	1,438	0,015	1%	35,5 %
c_{tbg}	6 Bq/m ³	2 Bq/m ³	33,3%	37,1 %
N_{rbg}	2,7 s ⁻¹ m ⁻³	0,7 s ⁻¹ m ⁻³	21,8%	8,5%
c_A	199,9 Bq/m ³	2,3 Bq/m ³	1,2%	
$N_{rMittelwertNetto}$	139,1 s ⁻¹ m ⁻³	0,8 s ⁻¹ m ⁻³	0,6%	
$N_{rMittelwert}$	141,8 s ⁻¹ m ⁻³	0,4 s ⁻¹ m ⁻³	0,2%	1,8%
$c_{tMittelwertNetto}$	191,4 Bq/m ³	2,4 Bq/m ³	1,3%	
$c_{tMittelwert}$	197,4 Bq/m ³	1,4 Bq/m ³	0,7%	17,1%
k_t	1,045	0,018	1,7%	

Tabelle 5.2: Unsicherheitsbudget für die Kalibrierung mit einem Sekundärnormal. Auf die Zählraten der VIKK wurde bereits die Totzeitkorrektur übertragen. Der Kalibrierfaktor k_r des Sekundärnormals folgt aus der Kalibrierung der VIKK mit einem Primärnormal.

In der Tabelle 5.2 sind die Werte für eine Kalibrierung eines Prüflings mit der VIKK „hoch“ zusammengefasst. Die Auswertung der α -Spektren der VIKK erfolgt mit dem in Abschnitt 4.2 beschriebenen Verfahren. Auf alle α -Spektren wird die Totzeitkorrektur angewendet. Der Zeitraum der Messung beträgt 120 h. Für die Aktivitätskonzentration wird jeweils der Mittelwert über das Zeitintervall von 120 h gebildet. Die Abbildung 5.3 zeigt die Response des Prüflings und der VIKK sowie die Mittelwerte über den Messzeitraum. Die Messwerte der VIKK wurden bereits mit dem durch die Primärkalibrierung erhaltenen Kalibrierfaktor k_r

multipliziert. Durch die exakte Auswertung ergibt sich für die VIKK die Aktivitätskonzentration in der Einheit Bq/m^3 , die direkt mit der Response des Prüflings verglichen werden kann. Sowohl vom Prüfling als auch von der VIKK wird stundenweise jeweils der Wert der Aktivitätskonzentration gemessen. Um den Kalibrierfaktor zu berechnen, wird der Mittelwert der Aktivitätskonzentration des Prüflings mit dem Mittelwert des Referenzmesssystem, hier der VIKK, im Referenzzeitintervall verglichen. Mit den in der Tabelle 5.2 zusammengefassten Werten ergibt sich für diese Sekundärkalibrierung der Kalibrierfaktor $k_t = 1,05 \pm 0,04$ (für $k = 2$).

Die Parameter aus der Tabelle 5.2 für die Kalibrierung als Sekundärnormal sind:

k_r	: Kalibrierfaktor des Sekundärnormals
c_{tbg}	: Untergrund des Prüflings
N_{rbg}	: Zählrate im Volumen der VIKK für den Untergrund
c_A	: Radon-Aktivitätskonzentration
$N_{rMittelwertNetto}$: Netto-Mittelwert der Zählrate im Volumen der VIKK
$N_{rMittelwert}$: Mittelwert der Zählrate im Volumen der VIKK
$c_{tMittelwertNetto}$: Netto-Mittelwert der Aktivitätskonzentration des Prüflings
$c_{tMittelwert}$: Mittelwert der Aktivitätskonzentration des Prüflings
k_t	: Kalibrierfaktor des Prüflings.

Bei dieser Kalibrierung erhält der Prüfling einen Kalibrierfaktor k_t . Die Messwertanzeige des Prüflings ist bei Messungen der Aktivitätskonzentration im Bereich von 200 Bq/m^3 mit diesem Faktor zu multiplizieren. Somit wird der Prüfling selbst zum Sekundärnormal und kann an nationalen Metrologieinstituten oder Strahlenschutzinstituten eingesetzt werden.

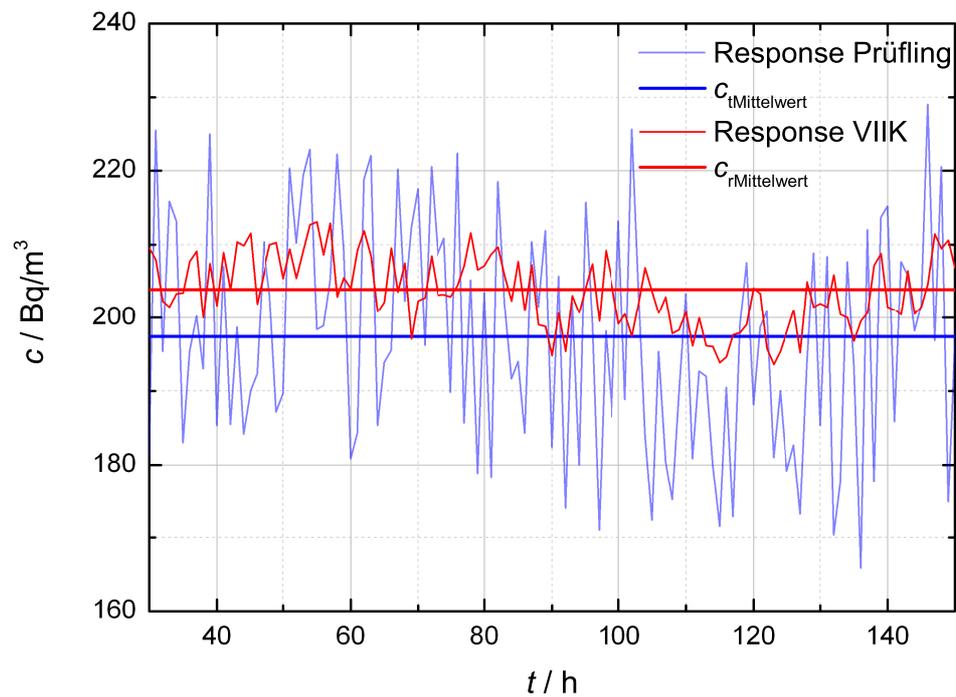


Abbildung 5.3: Dargestellt ist für die Sekundärkalibrierung mit der VIK „hoch“ die Response der VIK und die des Prüflings sowie die errechneten Mittelwerte der Aktivitätskonzentration ohne Abzug des ermittelten Untergrunds. Die Messwerte der VIK sind totzeitkorrigiert und bereits mit dem Kalibrierfaktor k_r der VIK multipliziert.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Das natürlich auftretende Edelgas Radon ist der Hauptbestandteil der aus der natürlichen Radioaktivität stammenden mittleren Strahlenexposition des Menschen. Deshalb werden weltweit große Anstrengungen unternommen, die Radonaktivitätskonzentration in Häusern und am Arbeitsplatz zu messen und gegebenenfalls durch geeignete Maßnahmen zu reduzieren.

Derzeitige Messgeräte zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration sind aber nur oberhalb von 1000 Bq/m^3 rückführbar kalibriert. Um diese Messgeräte nun auch unterhalb von 1000 Bq/m^3 mit kleinen Unsicherheiten zu kalibrieren, wurden konstante Referenzatmosphären erzeugt. Zur Darstellung der Einheit Aktivitätskonzentration c wurden Emanationsquellen entwickelt, die aus einem Radium-226-Aktivitätsnormal bestehen, welches Radon-222 emaniert. Die Rückführbarkeit der Referenzatmosphäre erfolgt hierbei über die Aktivität des Radium-226 $A(^{226}\text{Ra})$, den Emanationsgrad χ und das Referenzvolumen V . Es wurde ein Messplatz auf Basis der γ -Spektrometrie aufgebaut, an dem die Zählraten der offenen und umschlossenen Radium-226-Präparate verglichen werden. Aus den Zählraten wird der Emanationskoeffizient ermittelt, der zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration der Referenzatmosphäre dient. Mit den Emanationsquellen werden konstante Referenzatmosphären im Bereich von 150 bis 1900 Bq/m^3 erzeugt.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Low-Level-Radon-Referenzkammer aufgebaut, um konstante Referenzatmosphären zu generieren. In Kapitel drei ist der Aufbau der Low-Level-Radon-Referenzkammer beschrieben. Die Low-Level-Radon-Referenzkammer besteht aus einem rückgeführten Volumen und der Einrichtung zur Erzeugung und Überführung der definierten Aktivität. Zur Weitergabe der Einheit wurde ein hochempfindliches Transfornormal entwickelt, dessen Aufbau und Funktion in Kapitel vier erläutert ist. Das Transfornormal besteht aus einer großvolumigen Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer sowie deren Messelektronik und einer Software zur Auswertung der Messsignale. Mit der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer werden α -Teilchen im Bereich von 0 bis 22 MeV mit einer Auflösung von $0,08733 \text{ MeV}$ pro Kanal in Abhängigkeit von deren Energie detektiert und in einem Spektrum dargestellt. Aus dem Spektrum ergibt sich die Radonaktivitätskonzentration. In Kapitel fünf ist dargestellt, wie die Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer mit einem Primärnormal

kalibriert wurde und nun als Sekundärnormal zur Verfügung steht. Bei der Sekundärkalibrierung eines kommerziellen Messgeräts mit der VIIK wurde für den Kalibrierfaktor eine relative Unsicherheit von 3,5 % für $k = 2$ erreicht.

Kunden des Dienstleistungsbereiches der Arbeitsgruppe *Radon-Messtechnik* sind nationale Metrologie- und Strahlenschutzinstitute auf allen Kontinenten, das bei DAkkS akkreditierte Kalibrierlaboratorium des Bundesamtes für Strahlenschutz, nationale und internationale Forschungseinrichtungen und industrielle Gerätehersteller und Entwickler. Seit Jahren wird eine Kalibrierung im Bereich unterhalb von 1000 Bq/m^3 von diesen Kunden gewünscht, was sich aufgrund des Verfahrens der Darstellung der Einheit über ein Radon-Aktivitätsnormal in einem Referenzvolumen nicht mit kleinen Unsicherheiten realisieren ließ.

Mit dem neuen, in dieser Arbeit vorgestellten Verfahren zur Darstellung der Einheit über ein Aktivitätsnormal, der Emanationsbestimmung und dem Referenzvolumen verfügt die PTB nun über ein neues Primärnormal (Aktivitätskonzentration c mit $U_{\text{relativ}}(c) = 2,2 \%$ bei $k = 2$), welches das Leistungsangebot in den von dem Kunden gewünschten Bereich erweitert. Es wird erstmals die Kalibrierung kommerzieller Radonmesssysteme mit kleinen Unsicherheiten für den in Deutschland am häufigsten auftretenden Messbereich ermöglicht. Gleichzeitig wurde ein Transfornormal entwickelt, um die Weitergabe der Einheit mit minimalen Verlusten in der Unsicherheit ($U_{\text{relativ}}(k_t) = 3,4 \%$ bei $k = 2$) zu gewährleisten. Damit ergibt sich auch für zukünftige epidemiologischen Radon-Studien ein neues metrologisches Niveau und eine Verbesserung in der Qualitätssicherung.

Die PTB stellt mit ihrer Messtechnik sicher, dass die Ergebnisse von Radonmessungen sowohl in Deutschland als auch in vielen anderen Ländern zuverlässig sind. Dank zahlreicher Drittmittelprojekte entstanden neue Primärnormale, so dass sich die PTB international als führendes Kompetenzzentrum in der Metrologie etablieren konnte.

Die vorliegende Arbeit zeigt, dass mit dem hochsensiblen Transfornormal, der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer, neben den Radon-222 Atmosphären auch andere Atmosphären mit gasförmigen α -Strahlern (Radon-220, Radon-219) untersucht werden können. Dafür können optional die Auswertelgorithmen im Messdatenerfassungsprogramm angepasst werden. Weil für die Messungen kein Zählgas verwendet wird, ist der Detektor schnell vielerorts einsetzbar. Ein weiterer Vorteil ist, dass das komplette Detektorsystem durch die kompakte Bauweise leicht zu transportieren ist. Das System benötigt ausschließlich eine externe Stromversorgung für den gesamten Messbetrieb. So gab es bereits Anfragen, den Detektor zur Messung und Überwachung der Radonaktivitätskonzentration im Krater des Ätna in Sizilien einzusetzen. Dort wird die Radonaktivitätskonzentration überwacht, da es Studien gibt, die einen Zusammenhang zwischen einer veränderten Radonaktivitätskonzentration und einem nahenden Vulkanausbruch herstellen [63]. Weiterhin besteht das wissenschaftliche Interesse, Gradienten in der Radonaktivitätskonzentration in Berechnungen für Klimamodelle einfließen zu lassen. Das gasförmige Radon wird in Abhängigkeit von Druck und Temperatur unterschiedlich stark aus dem Erdreich emaniert und ist demzufolge unterschiedlich stark in der Atmosphäre konzentriert. Um diese Abhängigkeiten darzustellen, wird ein schnelles Ansprechvermögen des Messsystems vorausgesetzt. In der jetzigen Bauform ist der Detektor

bereits für viele unterschiedliche Anwendungen einsetzbar. Weitere Modifikationen und Erweiterungen liefern auch neue Einsatzgebiete. Es ist deshalb angedacht, das Transfernnormal in Lizenz bauen zu lassen.

Die Entwicklung einer Low-Level-Kalibriereinrichtung für Radon-222 Messsysteme berührt Themen des Strahlenschutzes der Bevölkerung ebenso wie bautechnische Fragen wie die Sinnhaftigkeit von thermischer Häusersanierung und Fragen der Grundlagenforschung (angefangen bei der Verbesserung von Klimamodellen bis hin zur Charakterisierung des Untergrunds bei Neutrinoexperimenten). Inwieweit sich die Verbesserung der Messtechnik in diesen Gebieten auswirken wird, und ob neue Effekte durch die kleine Unsicherheit jetzt sichtbar werden, wird die Zukunft zeigen.

Kapitel 7

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Herrn Prof. Dr. Rolf Michel von der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover danke ich für die Betreuung seitens der Universität, die Übernahme des Gutachtens und die vielen wertvollen Hinweise und Hilfen.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Clemens Walther von der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover für die Bereitschaft ein Gutachten für diese Dissertation zu erstellen.

Für die Betreuung seitens der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt, für die Übernahme des Gutachtens sowie für kritische Anmerkungen und wertvolle Hinweise möchte ich mich bei Dr. Dirk Arnold aus der Abteilung 6 unter der Leitung von Herrn Prof. Dr. Herbert Janßen bedanken.

Besonders möchte ich mich bei der gesamten Arbeitsgruppe 6.13 für die große Hilfsbereitschaft, die stets herzliche Atmosphäre und die Unterstützung bei den Messungen bedanken. Frau Dr. Annette Röttger und Frau Dipl.-Ing. Anja Honig danke ich für die ausgezeichnete Betreuung. Bei Herrn Jörg Leppelt möchte ich mich für seine erfolgreichen Bemühungen bezüglich der Entwicklung der Elektronik und Software bedanken. Herrn Thomas Reich, Herrn Matthias Fritsche und Frau Viviane Notzon danke ich für die große Unterstützung beim Aufbau der Messeinrichtungen.

Für die Präparation der Quellen danke ich der Arbeitsgruppe 6.11 der PTB und dabei besonders Frau Christiane Nidergesäß und Frau Stefanie Hennig.

Den Fachbereichen 6.4 und 6.5 danke ich für die Unterstützung bei der Detektorentwicklung, vor allem Herrn Dr. Stefan Röttger für die konstruktiven Ideen sowie Herrn Matthias Weierganz und Herrn Michael Laschinski.

Dem Fachbereich 1.7 und besonders Herrn Dipl.-Ing. Heinrich Bietz danke ich für die akustischen Messungen.

Herrn Dr. Volkmar Schmidt vom Bundesamt für Strahlenschutz danke ich für die interessanten Diskussionen rund um das Transfornormal, ebenso wie den internationalen Kollegen aus den verschiedenen Metrologieinstituten und der ICRU für die vielfältigen Anregungen.

Für das Forschen und Entdecken zusammen mit den Kindern sowie die schöne Zusammenarbeit danke ich den *WissensForschern* und allen Expäds.

Ich möchte mich auch bei den Personen bedanken, die während der Zeit auf die eine oder andere Art eine wichtige Rolle gespielt haben. Deshalb geht ein besonderer Dank an Mario, Manu, Kerstin, Silvana, Sven, Christian, Nadja, Thomas und Jeannine.

Zu guter Letzt danke ich ganz besonders meinen Eltern, die mir immerzu unterstützend zur Seite standen.

Literaturverzeichnis

- [1] COMMITTEE ON HEALTH RISKS OF EXPOSURE TO RADON, BOARD ON RADIATION EFFECTS RESEARCH, COMMISSION ON LIFE SCIENCES, NATIONAL RESEARCH COUNCIL: *Health Effects of Exposure to Radon: BEIR VI*. USA : Commission on Life Sciences, 1999. – ISBN 0–309–05645–4
- [2] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ: *Radon ist zweithäufigste Ursache für Lungenkrebs*. – Pressemitteilung 001 vom 01.02.2005, <http://www.bfs.de/de/bfs/presse/pr05/pr0501.html>
- [3] S. DARBY ET. AL.: Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies. In: *British Medical Journal* (2005)
- [4] ERNST WITT, ERICH JÄGER, LORENZ KASPER: *Strahlenschutzverordnung*. Germany : Carl Heymanns Verlag, 15. Auflage 2009. – ISBN 978–3–45227103–7. – §95 Natürlich vorkommende radioaktive Stoffe an Arbeitsplätzen
- [5] ICRP VERÖFFENTLICHUNG 65: *Schutz vor Radon-222 zu Hause und am Arbeitsplatz*. Gustav Fischer Verlag, 1996. ISBN 3–437–11707–6
- [6] PHYSIKALISCH-TECHNISCHE BUNDESANSTALT (PTB): <http://www.ptb.de/cms/dieptb.html>. – WEB-Redaktion der PTB, letzte Änderung: 2012-01-11
- [7] PHYSIKALISCH-TECHNISCHE BUNDESANSTALT (PTB): *Die PTB kurz vorgestellt*. Website, 2011. – Online unter <http://www.ptb.de/cms/de/dieptb/die-ptb-kurz-vorgestellt.html>, letzte Änderung: 2011-11-17, WEB-Redaktion
- [8] PHYSIKALISCH-TECHNISCHE BUNDESANSTALT (PTB): *PTB Vortrag deutsch*. – Physikalisch-Technische Bundesanstalt, interner Vortrag
- [9] PHYSIKALISCH-TECHNISCHE BUNDESANSTALT (PTB): <http://www.ptb.de/cms/dieptb.html>. 2012. – Internetseite
- [10] ISO: *DIN EN ISO/IEC 17025:2005-08 (D)*. Beuth-Verlag, 2005
- [11] DIN IEC 61577-1: *Radiation protection instrumentation - Radon and radon decay product measuring instruments - Part 1: General principles*. Ausgabe 2007-06. – Geneva, Switzerland

- [12] DIN IEC 61577-2: *Radiation protection instrumentation - Radon and radon decay product measuring instruments - Part 2: Specific requirements for radon measuring instruments*. Ausgabe 2012-01. – Geneva, Switzerland
- [13] DIN IEC 61577-3: *Radiation protection instrumentation - Radon and radon decay product measuring instruments - Part 3: Specific requirements for radon decay product measuring instruments*. Ausgabe 2012-06. – Geneva, Switzerland
- [14] ANJA HONIG, ANNETTE PAUL, STEFAN RÖTTGER, NIKLAS MANZ, UWE KEYSER: *Die Radonnormal-Kammer der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt*. PTB Laborbericht PTB-Q.2-1998-1, Mai 1998
- [15] PHYSIKALISCH-TECHNISCHE BUNDESANSTALT (PTB): http://www.ptb.de/de/org/6/_index.htm. – Arbeitsgruppe 6.13, Einleitung, 16.03.2012
- [16] UNSCEAR: *United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation, Sources and Effects of Ionizing Radiation*. – Report to the General Assembly, with annexes. United Nations Sales Publication, New York, 2000
- [17] THIEME-STRATTON: *Seminars in respiratory medicin*. Thieme-Stratton Inc., 1980. – New York
- [18] HANS-GERRIT VOGT, HEINRICH SCHULTZ: *Grundzüge des praktischen Strahlenschutzes*. München : Carl Hanser Verlag, 2010. – ISBN 978–3–446–42037–3
- [19] ICRP: *Recommendations of the International Commission on Radiological Protection*. Annals of the ICRP 21, 1991. ISBN Publication 60
- [20] UNSCEAR: *United Nations Scientific Committee on Effects of Atomic Radiation, Sources and Effects of Ionizing Radiation, Appendix B: Exposures from natural radiation sources*. – Report to the General Assembly, with annexes. United Nations Sales Publication, New York, 2000
- [21] J.D. HARRISON, J. W. MARSH: Effective dose from inhaled radon and its progeny. In: *Annals of the ICRP, Article in press* (2012). – doi:10.1016/j.icrp.2012.06.012
- [22] ERNST WITT, ERICH JÄGER, LORENZ KASPER: *Strahlenschutzverordnung*. Germany : , Ausfertigungsdatum: 20.07.2001. – ISBN . – Strahlenschutzverordnung vom 20. Juli 2001 (BGBl. I S. 1714; 2002 I S. 1459), die zuletzt durch Artikel 5 Absatz 7 des Gesetzes vom 24. Februar 2012 (BGBl. I S. 212) geändert worden ist
- [23] J. MAGILL, G. PFENNIG, J. GALY: *Karlsruher Nuklidkarte*. Haberbeck, 7. Auflage 2006. ISBN 92–79–02175–3
- [24] WORLD HEALTH ORGANIZATION, EDITED BY HAJO ZEEB AND FERID SHANNOUN: *WHO Handbook on indoor radon - a public health perspective*. Printed in France : WHO Library Cataloguing-in-Publication Data, 2009. – ISBN 978–92–4–154767–3

- [25] ARPESELLA, C. AND BAM, B.B. AND BASSIGNANI, A. AND CECCHINI, S. AND COLOMBO, G. AND OTHERS: Radon measurements in the Gran Sasso underground laboratory. In: *Health Phys.* 72 (1997), S. 629–632
- [26] G. HEUSSER, M. LAUBENSTEIN, H. NEDER: *Low-level germanium gamma-ray spectrometry at the $\mu\text{Bq/kg}$ level and future developments towards higher sensitivity.* – MPI für Kernphysik / Neutrino Physics, MM-DD): 2004-10-25
- [27] AL., A. B.: Measurement of radon concentration and gamma ray activity in hall B of the Gran Sasso Laboratory. In: *Radiation Measurements* Volume 26, Nos 1-6 (1997), S. pp. 609–612)
- [28] UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY: *EPA Map of Radon Zones.* – <http://www.epa.gov/radon/zonemap.html>, EPA Home Last updated on Montag, 2. April 2012
- [29] ISO/IEC: *Uncertainty of measurement.* – ISO/IEC Guide 98-3:2008, Part 3: Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM:1995)
- [30] R. DERSCH: Primary and secondary measurements of ^{222}Rn . In: *Applied Radiation and Isotopes* 60 (2004), S. 387–390
- [31] PHYSIKALISCH-TECHNISCHE BUNDESANSTALT (PTB): *Katalog Aktivitätsnormale.* Website, 2011. – Online unter http://www.ptb.de/de/org/6/_index.htm; besucht am 10. November 2011.
- [32] J. L. PICOLO: Absolute measurements of radon 222 activity. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 369 (1996), S. 452–457
- [33] LINDE AG: *Datasheet Synthetische Luft.* – http://www.linde-gase.de/produkte/cyl_techgas/cyl_techgas/synthetische_luft.html, Stand 21.04.2008
- [34] A. HONIG: *Arbeitsanweisung AA-6100-301.* 2011. – Punkt-Kalibrierung von aktiven Radon-Messsystemen mittels Radongas-Normals in einem Kalibriervolumen (Primär Kalibrierung)
- [35] E. RUTEHRFORD: A Radioactive Substance emitted from Thorium Compounds. In: *Philosophical Magazine* ser. 5, xlix (January 1900), S. pp. 1–14. – Communicated by Professor J.J. Thomson, F.R.S.
- [36] ERNST DORN: Über die von radioaktiven Substanzen ausgesandte Emanation. In: *Abhandlungen der Naturforschenden Gesellschaft zu Halle XXIII* Band (1901), S. 2–14. – E. Schweizerbart'sche Verlagshandlung Stuttgart
- [37] C. NIEDERGESÄSS: *Aktivitätsnormal - Flächenhaftes Präparat mit Ra-226 als Emanationsquelle für Rn-222.* 2010. – Physikalisch-Technische Bundesanstalt Braunschweig und Berlin, AG 6.11

- [38] PHYSIKALISCH-TECHNISCHE BUNDESANSTALT (PTB): *Kalibrierschein vom 20.12.2006, Kalibrierzeichen: PTB-6.11-252-98*. – Kennnummer 252-98, Abdeckfolie: Aluminium, 0,1 mm und 0,05 mm
- [39] ERNST WITT, ERICH JÄGER, LORENZ KASPER: *Strahlenschutzverordnung*. Germany : Carl Heymanns Verlag, 15. Auflage 2009. – ISBN 978-3-45227103-7. – §3 (2), 29 Begriffsbestimmungen
- [40] A. RÖTTGER ET. AL.: A primary standard for activity concentration of ^{220}Rn (thoron) in air. In: *Applied Radiation and Isotopes* 68 (2010), S. 1292–1296
- [41] K. DEBERTIN AND R. G. HELMER: *Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors*. Elsevier Science Publishers B.V. , Amsterdam : Physical Sciences and Engineering Division, 1988. – ISBN 0 444 871071
- [42] GLENN F. KNOLL: *Radiation Detection and Measurement*. New York : John Wiley and Sons, Inc., 2000 3rd ed.. – ISBN 0-471-07338-5
- [43] MARIE-MARTINE BÉ ET. AL.: *Monographie 5 BIPM*. Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres : BIPM, 2008. – ISBN 92-822-2230-6. – Table of Radionuclides Vol. 4 - A=133 to 252
- [44] ARNOLD F. HOLLEMANN, EGON WIBERG: *Lehrbuch der anorganischen Chemie*. Berlin u. a. : de Gruyter, 1995. – ISBN 3-11-012641-9
- [45] O. HUNDSHAGEN´, K. STURM: *Geometrische Volumenbestimmung, Projektnummer P08230*. 2009. – Trinos Vakuum-Systeme GmbH
- [46] ROGERS CORPORATION: *RO4000 Seies High Frequency Circuit Materials, Datenblatt 2011*. – <http://www.rogerscorp.com/documents/726/acm/RO4000-Laminates-Data-sheet.aspx>, geöffnet am 29.03.2012
- [47] NIKLAS MANZ: *Aufbau und Optimierung einer Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer zur Messung niedriger Radon-Aktivitätskonzentrationen in Luft*, angefertigt an der Physikalisch-Technische Bundesanstalt in Braunschweig, Diplomarbeit, 13. Juni 1997
- [48] S. RÖTTGER, A. PAUL, A. HONIG, UWE KEYSER: On-line low- and medium-level measurements of the radon activity concentration. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 466 (2001), S. 475–481
- [49] HUK, M. u. a.: Electron attachment to oxygen, water, and methanol, in various drift chamber gas mixtures. In: *Nucl. Instrum. Meth.* A267 (1988), S. 107–119
- [50] GUANGDONG SHENGYI SCI.TECH. : *S1130 (ANSI:FR4) Conventional FR4, Datenblatt*. – <http://paramount-usa.com/S1130.pdf>, geöffnet am 23.05.2012
- [51] LINEAR TECHNOLOGY: *Demo Circuit 1416 Quick Start Guide, Low Noise Transimpedance Amplifier, PDF 2008*. – <http://cds.linear.com/docs/Demo Board Manual/dc1416A.pdf>, aufgerufen am 30.6.2010

-
- [52] ORTEC: *Amplifiers*. – www.envinet.cz/pt/files/ortec/Amplifiers.pdf (neuere Version), aufgerufen am 8.10.2009
- [53] E.FAIRSTEIN: Linear unipolar pulse-shaping networks:current technology. In: *IEEE Transactions on nuclear science* 37, No. 2 (1990), S. 382–397
- [54] VELJKO RADEKA: Low-noise techniques in detectors. In: *Annual Review of Nuclear Particle Science* 38 (1988), S. 217–77
- [55] G. LUTZ, P. F. MANFREDI, V. RE AND V. SPEZIALI: Limitations in the accuracy of detector charge measurements set by the 1/f-noise in the front-end amplifier*. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 277 (1989), S. 194–203
- [56] P.BALTZER, K. G. GÖRSTEN AND A. BÄCKLIN: A pulse-counting ionization chamber for measuring the radon concentration in air. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 317 (1991), S. 357–364
- [57] STEFAN RÖTTGER, ANNETTE PAUL, UWE KEYSER: *Vieldraht-Impuls-Ionisationskammern zur Präzisionsmessung der Radon-Aktivitätskonzentration in Luft*. Germany : Physikalisch-Technische Bundesanstalt Braunschweig und Berlin, Januar 1998. – ISBN 3–589701–117–4. – PTB-PG-10
- [58] DÄMMIG, P.: Model Investigations into Sound Fields in Reverberation Rooms. In: *Acta Acustica united with Acustica*, Volume 75, Number 2 (November 1991), S. pp. 105–120(16)
- [59] NATIONAL INSTRUMENTS: *NI LabVIEW*. – <http://www.ni.com/labview/d/>
- [60] LAUER, MARTIN: *Digital Signal Processing for segmented HPGe Detectors Preprocessing Algorithms and Pulse Shape Analysis*, Ruperto-Carola University of Heidelberg, PHD Thesis, 2004
- [61] VALENTIN T. JORDANOV, GLENN F. KNOLL: Digital synthesis of pulse shapes in real time for high resolution radiation spectroscopy. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 345 (1994), S. 337–345
- [62] LUCIAN MIHAILESCU: *Principles and Methodes for γ -Ray Tracking with Large Volume Germanium Detectors*, Rheinische Fridrich-Wilhelms-Universität Bonn, Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät, PHD Thesis, November 2000
- [63] P. RICHON, J.-C. SABROUX, M. HALBWACHS, J. VANDEMEULEBROUCK, N. POUSSIELGUE, J. TABBAGH, R. PUNONGBAYAN: Radon anomaly in the soil of Taal volcano, the Philippines: A likely precursor of the M 7.1 Mindoro earthquake (1994). In: *Geophysical Research Letters* Vol. 30, No. 9, 1481 (May 2003), S. 34–1 – 34–4
- [64] ISEG SPEZIALELEKTRONIK GMBH: *NHQ Hochspannungsmodule in NIM*. – http://www.iseg-hv.de/download.php/467/file_url_de/iseg_NHQ.pdf

- [65] NATIONAL INSTRUMENTS: *Datenblatt NI PCI-6115*
Multifunktions-Datenerfassungsmodul mit simultaner Abtastung. –
<http://sine.ni.com/nips/cds/view/p/lang/de/nid/11886>

Anhang A

Anhang

A.1 Emanationsquellen

Die Abbildungen A.1, A.2 und A.2 zeigen für drei Emanationsquellen den über ein Zeitintervall von 35, 24 bzw. 17 Tagen ermittelten Emanationskoeffizienten. Die aus den Emanationskoeffizienten errechneten Aktivitätskonzentrationen im Referenzvolumen sind in der Tabelle 3.1 auf Seite 21 zusammengefasst.

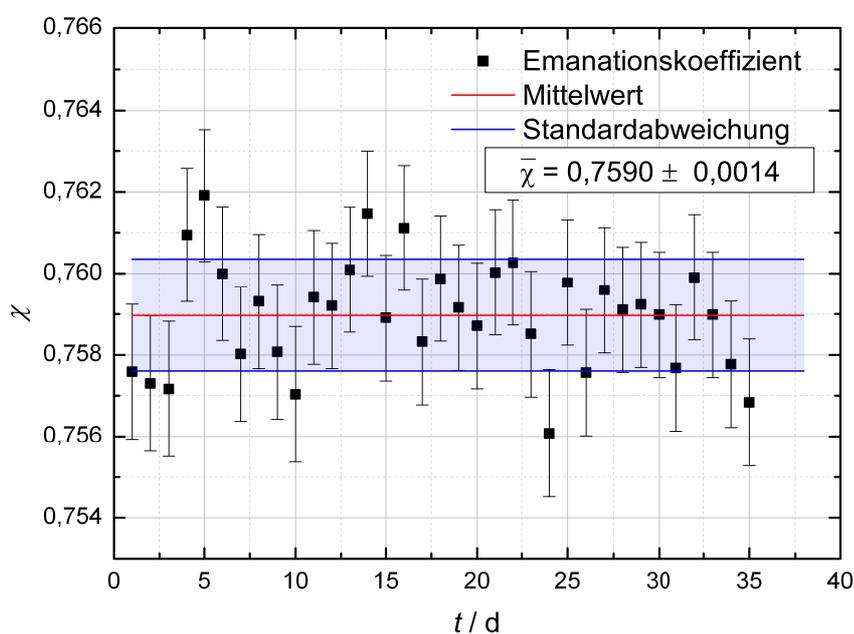


Abbildung A.1: Gemessener Emanationskoeffizient in Abhängigkeit von der Messzeit für die Emanationsquelle Ra-226 2011-1623.

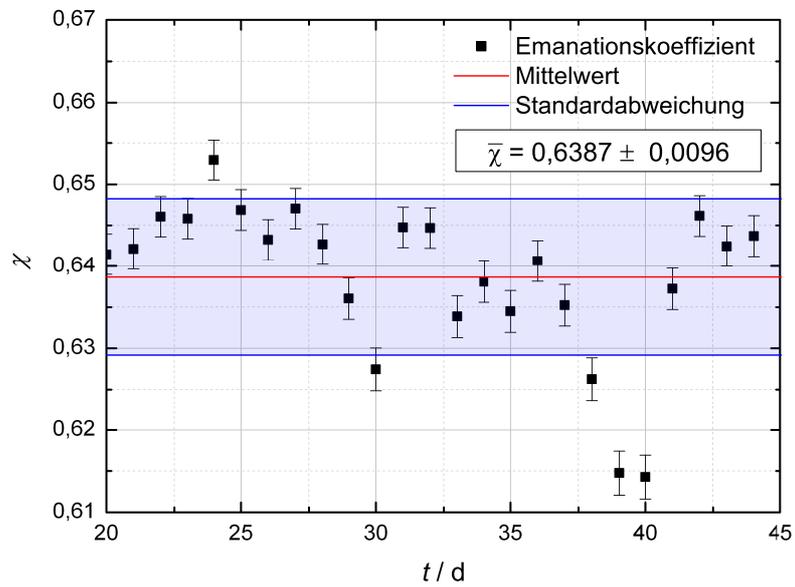


Abbildung A.2: Gemessener Emanationskoeffizient in Abhängigkeit von der Messzeit für die Emanationsquelle Ra-226 2011-1624.

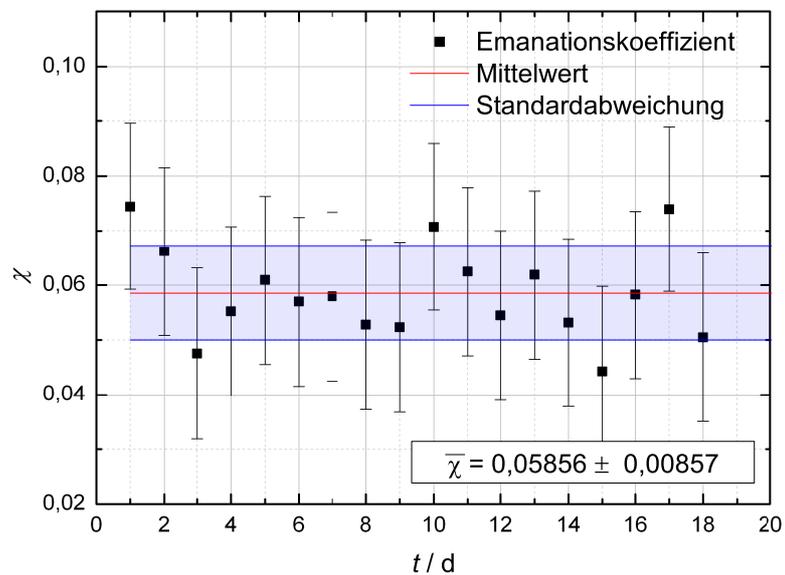


Abbildung A.3: Gemessener Emanationskoeffizient in Abhängigkeit von der Messzeit für die Emanationsquelle Ra-226 2010-1816.

A.2 Platinenlayout

In der Abbildung A.4 a) ist die Verstrebungsplatine der VIIK „hoch“ zu sehen. Sie befindet sich in der Mitte der VIIIK, wie in Abbildung 4.2 gezeigt. Die Verstrebungsplatine kann auf der Gesamtlänge der Elektrodenstäbe verschoben werden. Durch die zahlreichen Ventilationslöcher (ca. 400 Stück) mit einem Durchmesser von 6,0 mm wird ein optimaler Luftaustausch sichergestellt. Wird die Platine leicht verdreht oder gekippt, so werden einige Elektrodenstäbe verspannt und deren Eigenschwingungen werden reduziert. Eine Nahaufnahme der eingebauten Verstrebungsplatine in die VIIK zeigt die Abbildung A.4 b).

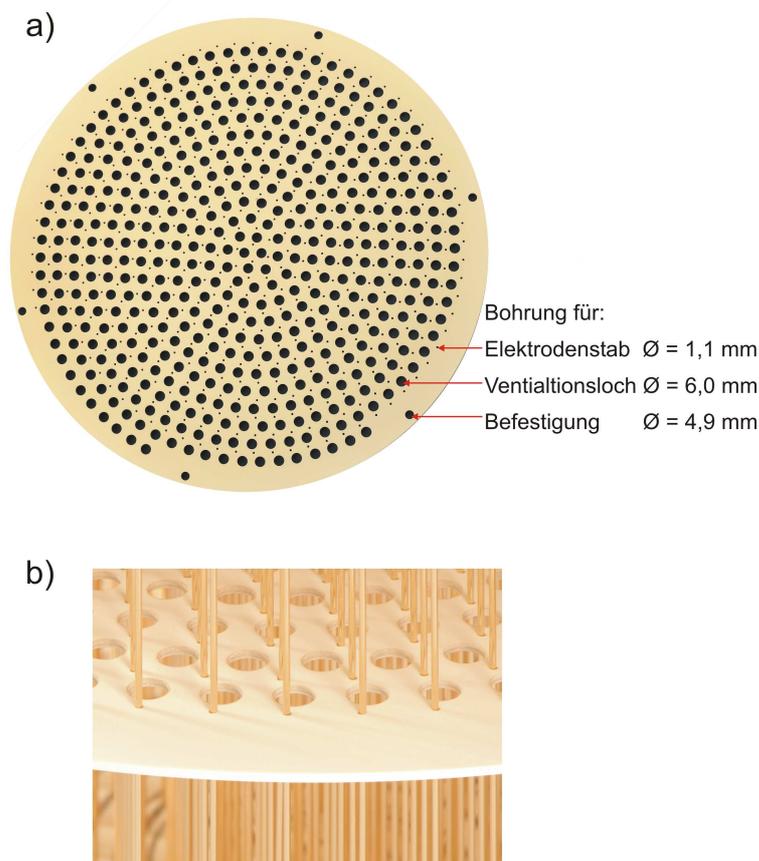


Abbildung A.4: a) Foto der Verstrebungsplatine. Die Größen der einzelnen Löcher auf der Platine sind gekennzeichnet und bemaßt. b) Nahaufnahme der Verstrebungsplatine in der VIIK „hoch“.

A.3 Vorverstärker

In der Abbildung A.6 ist der Bestückungsplan des Vorverstärkers gezeigt. In den Vorverstärker wird eine konstante rauscharme Versorgungsspannung von ± 12 V eingespeist. Die Erzeugung der Hochspannung erfolgt mit der Hochspannungsquelle *iseg NHQ 250M* [64], da diese ein Rauschen von maximal 5 mV_{pp} hat. Ein weiterer Vorteil ist, dass eine Begrenzung des Stroms eingestellt werden kann, so dass bei einem Kurzschluss die Hochspannung automatisch heruntergefahren wird. Um die Hochspannung zusätzlich zu stabilisieren, wird diese über einen RC-Filter geführt und über den Vorverstärker an die VIHK angelegt. Die VIHK wird während der Messung mit einer Hochspannung von 600 V betrieben. In diesem Spannungsbereich werden die Impulshöhen bereits gut aufgelöst und das Rauschen der Hochspannung ist gering. Die Abbildung A.5 zeigt ein Foto der verwendeten Spannungsversorgung, Hochspannungserzeugung und den PC zur Auswertung der Signale der Vieldraht-Impuls-Ionisationskammer.

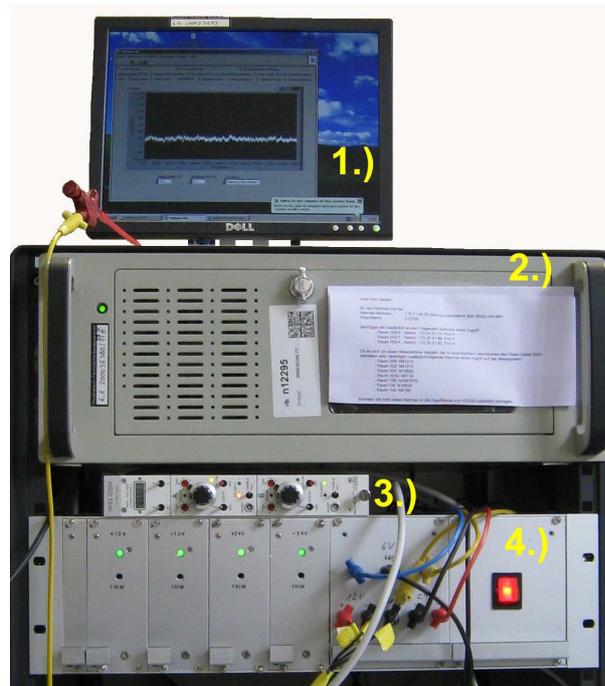


Abbildung A.5: Hardware zur Messdatenerfassung. 1.) Bildschirm mit grafischer Anzeige der Impulse, 2.) PC mit Analog-Digital-Wandlerkarte, 3.) Hochspannungsquelle, 4.) Spannungsversorgung.

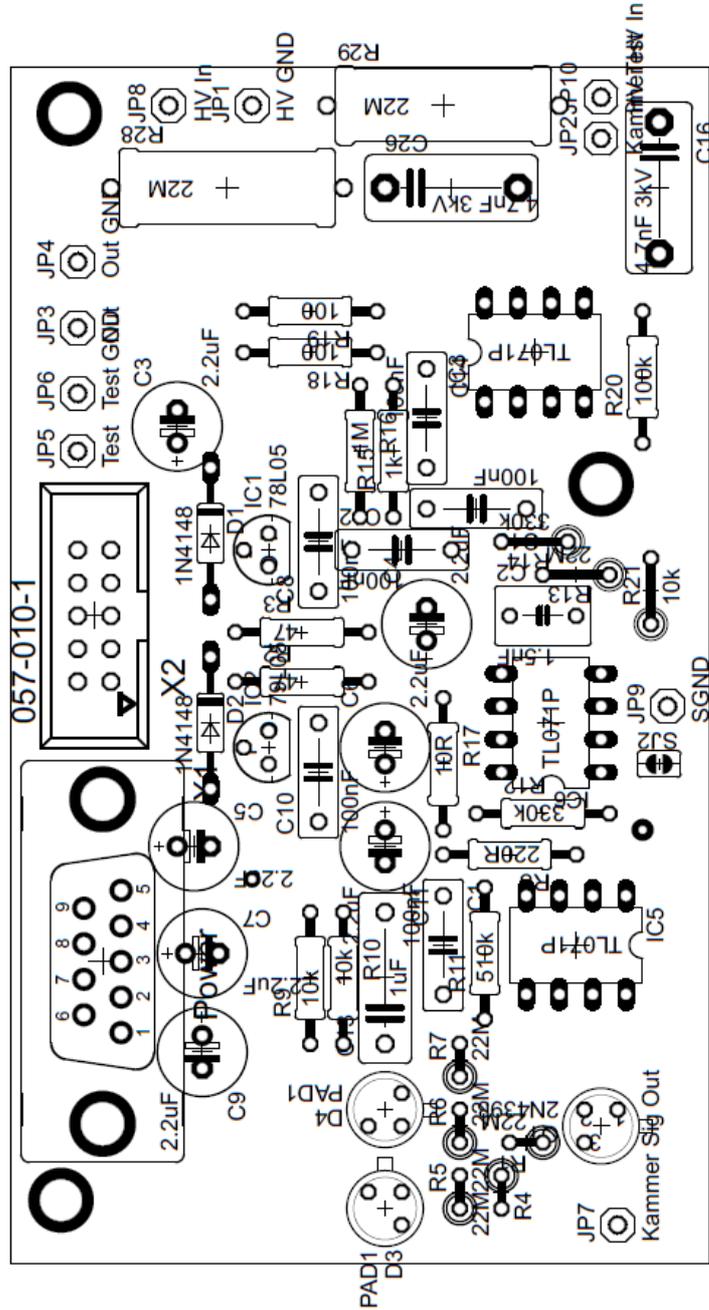


Abbildung A.6: Bestückungsplan des Vorverstärkers.

A.4 Messung der Folgeprodukte

Die VIIK „hoch“ wird im 100 L Referenzvolumen für drei Stunden mit einer Radonaktivitätskonzentration beaufschlagt. Anschließend wird die VIIK „hoch“ aus dem Referenzvolumen entfernt und in ein radonfreies Volumen gebracht. Die Messdatenerfassung erfolgte mit dem in Kapitel 4 beschriebenen Algorithmen. Die Abbildung A.7 zeigt die gemessene Zählrate in Abhängigkeit von der Energie. Das α -Spektrum wird jeweils für den Messzeitraum von einer Stunde dargestellt. Durch das Beaufschlagen der VIIK mit Radon lagert sich an den Elektrodenstäben das positiv geladene Po-218 an. Dort zerfällt es unter Aussendung eines α -Teilchens. Das sich im Volumen des Detektors bildende Po-214 mit der Energie $E_\alpha = 7,69$ MeV wird gemessen. Die Spektren zeigen, dass sich die Zählrate unterhalb von 6 MeV aus der unvollständigen Energieabgabe der α -Teilchen, sowie Rauscheffekten und der Kontamination der VIIK mit Pb-210 zusammensetzt. Nach drei Stunden Messzeit ist das Po-214 nahezu vollständig zerfallen. Im Energiebereich von 2 MeV bis 9 MeV wird für diesen Messzeitraum nur noch eine sehr geringe Zählrate registriert.

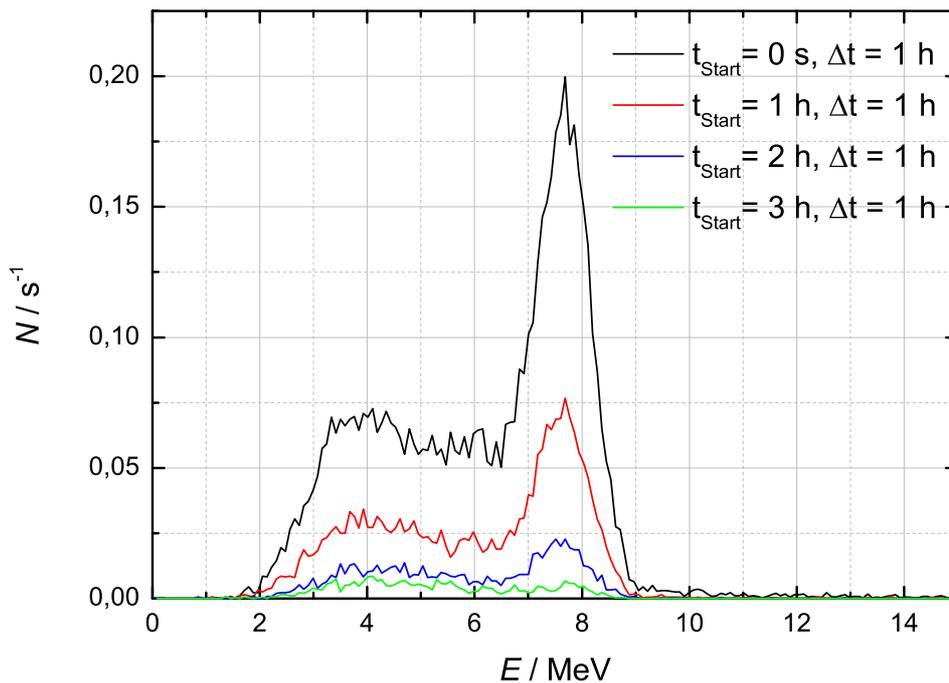


Abbildung A.7: Zählrate in Abhängigkeit von der Energie gemessen mit der VIIK „hoch“. Die Darstellung zeigt α -Spektren der Radon-Folgeprodukte für jeweils eine Stunde Messzeit.

A.5 Akustische Abschirmung der VIK

Für den externen Betrieb wird die VIK zur akustischen Abschirmung in ein Gehäuse eingebaut. Das Gehäuse ist schematisch in Abbildung A.8 dargestellt, ein Foto zeigt die Abbildung A.9. Das Gehäuse besteht aus mehreren Schichten, um optimal den von außen einwirkenden Körperschall und Luftschall zu unterdrücken. Die äußerste Schicht besteht aus Bitumplatten, die direkt auf ein Aluminiumgehäuse geklebt sind. Im Inneren des Gehäuses befindet sich zur besseren Leitfähigkeit eine Schicht Aluminiumfolie, auf welche Akustikschaumstoff geklebt ist. Dieser wurde anschließend zur Abschirmung ebenfalls mit Aluminiumfolie beklebt. Durch mehrere Versuchsaufbauten und Versuchsmessungen wurde bestätigt, dass ein Gehäuse aus verschiedenen Materialien von Vorteil ist. Da alle Materialien unterschiedliche Resonanzfrequenzen haben, wird der von außen einwirkende Körper- und Luftschall gemindert. Weiterhin zeigte sich, dass es hilfreich ist, ein Gehäuse von großer Masse einzusetzen. Auf Grund dieser Erkenntnisse wird ein gasdichtes Gehäuse aus Edelstahl angefertigt.

In der Abbildung A.8 ist der Deckel des Gehäuses nicht dargestellt. Das Gehäuse muss für die Messzwecke jedoch geschlossen sein, da sonst die Radonaktivitätskonzentration in die Umgebung entweicht und die Messwerte der VIK mit einem starken 50 Hz Signal überlagert sind. Auf zwei sich gegenüberliegenden Seiten befinden sich zwei Bohrungen mit Gasanschlüssen, damit das Radongas mit einem Volumenstrom in das Abschirmvolumen transportiert wird. Durch den Volumenstrom wird sichergestellt, dass sich das Radongas optimal im Volumen der Abschirmung verteilt, so dass auch 100 % des aktiven Detektorvolumens zur Messung der Radonaktivitätskonzentration genutzt werden.

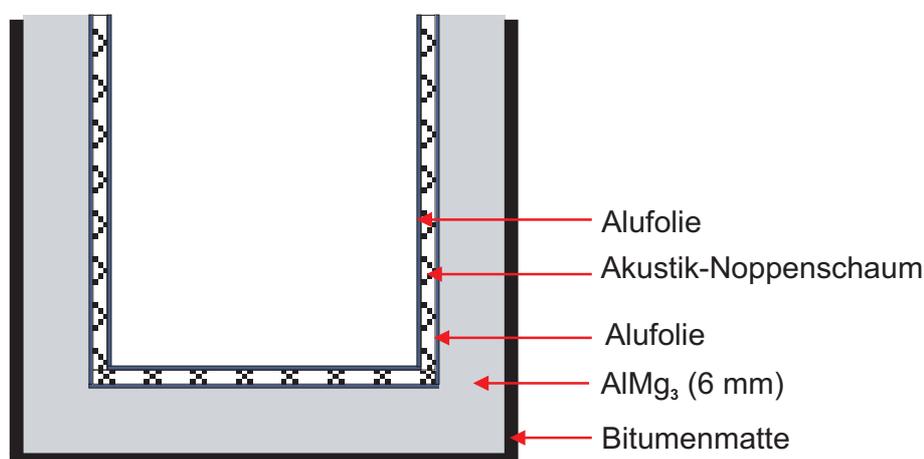


Abbildung A.8: Querschnitt der akustischen Abschirmung der VIK. Das Gehäuse hat eine Länge, Breite und Höhe von 50 cm und damit ein Volumen von 0,125 m³. Durch die mehrschichtige Bauweise wird die Übertragung von Körper- und Luftschall reduziert. In der Abbildung ist der Deckel des Gehäuses nicht gezeigt.

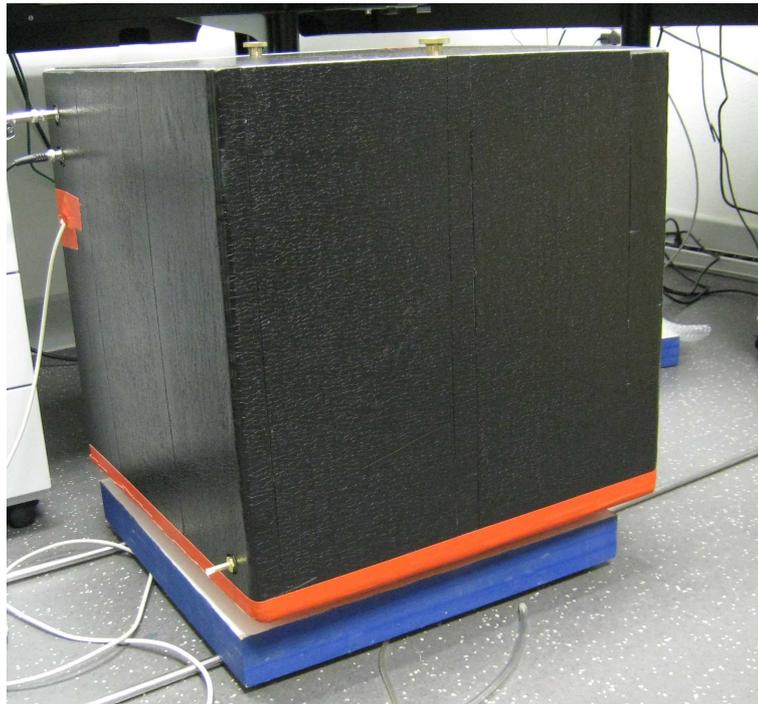


Abbildung A.9: Foto des akustischen Abschirmgehäuses der VIK. Oben links im Bild sind die Durchführungen für die Versorgungsspannung, die Hochspannung sowie die Signalleitung gezeigt. Unten links befindet sich ein Gasanschluss.

A.6 Programm zur Messdatenaufzeichnung

Die Abbildung A.10 zeigt die grafische Bedienoberfläche des erstellten LabView-Programms zur Auswertung der Impulshöhen. Das Programm besitzt 17 verschiedene Reiter, unter denen die Einstellungen für die Messdatenerfassung variiert werden können. Für alle in der Arbeit gezeigten Messdaten wurde zur Umwandlung der analogen Signale in digitale Signale die Wandlerkarte *National Instruments PCI-6115* [65] verwendet. Die Karte besitzt 4 Hochgeschwindigkeits-Analogeingänge mit einer Abtastrate von 10 MS/s pro Kanal. Die Signale des Vorverstärkers werden in einen der Analogeingänge eingespeist. Der Eingang weist eine Auflösung von 12 Bit auf und der Bereich der Eingangsspannung wurde auf ± 2 V festgelegt, da die Signale der α -Zerfälle auf Grund der Verstärkung durch den Vorverstärker im 500 mV-Bereich liegen. Ein Spektrum der positiven Impulshöhen ist in der Abbildung A.11 gezeigt. Während einer Messdatenaufzeichnung wird das Spektrum kontinuierlich aktualisiert.

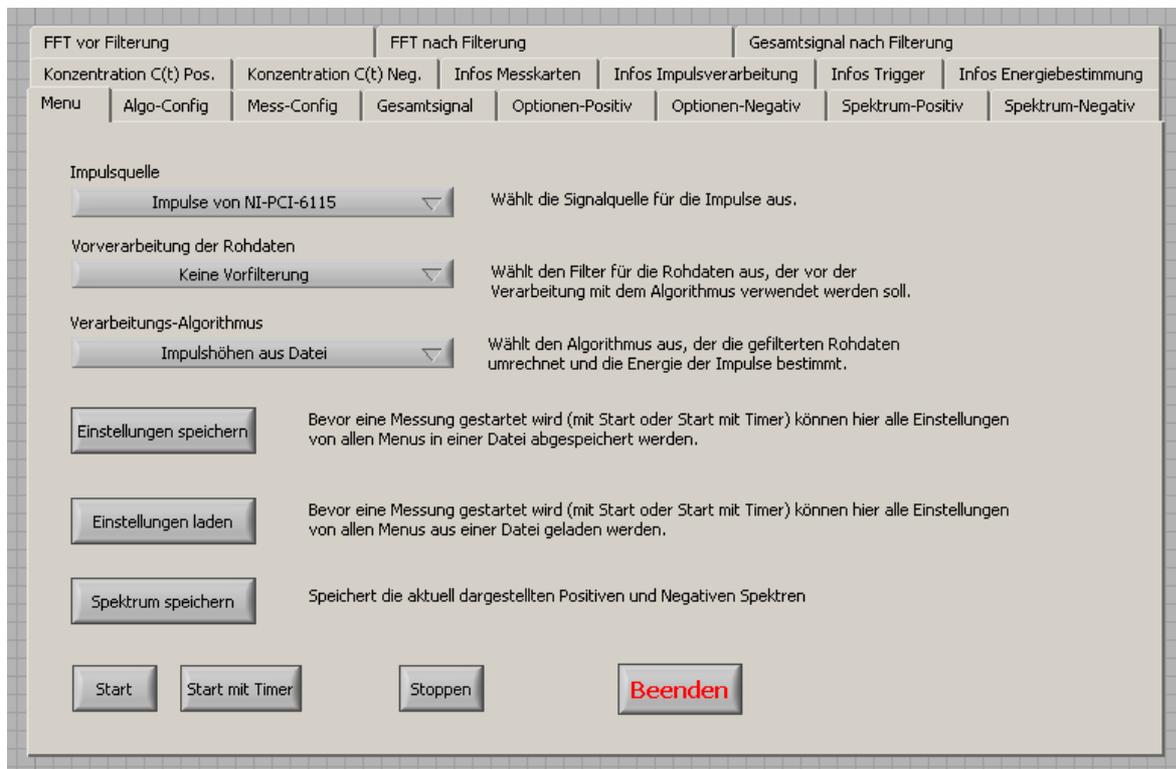


Abbildung A.10: Bildschirmfoto des LabView-Programms zur Aufzeichnung der Messdaten. Das Programm ermöglicht dem Nutzer die Auswahl der Datenerfassungskarte und deren Parameter sowie die Auswahl des Auswertalgorithmus.

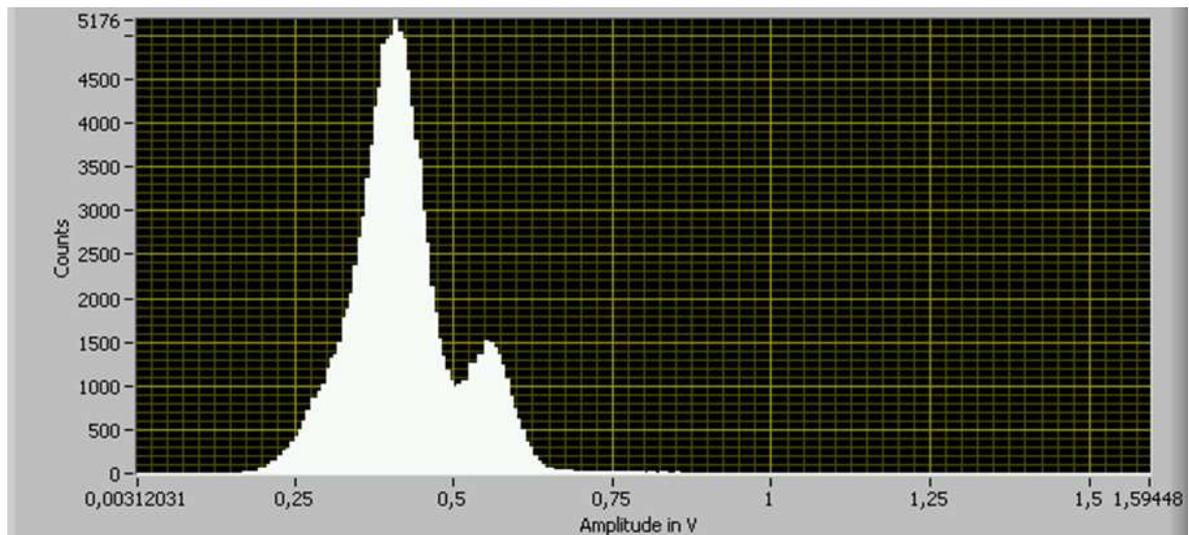


Abbildung A.11: Spektrum der positiven Impulshöhen nach Anwendung des MWD- und des MA-Algorithmus.

Energierекonstruktion

Die Gleichung

$$U_a(x) = A \cdot R_{11} \cdot \frac{C_1}{\tau_1 - \tau_2} \cdot \left(\frac{1}{\tau_2} \cdot e^{-\frac{x}{\tau_2}} - \frac{1}{\tau_1} \cdot e^{-\frac{x}{\tau_1}} \right) \quad (\text{A.1})$$

mit den Parametern

- A : Verstärkungsfaktor des Vorverstärkers
- R_{11} : Widerstand auf dem Vorverstärker
- C_1 : Kondensator auf dem Vorverstärker
- τ_1 : Zeitkonstante des Vorverstärkers
- τ_2 : Zeitkonstante des Vorverstärkers

dient zur Erzeugung doppelt exponentieller Impulse. Die Parameter der Bauteile des Vorverstärkers fließen in die Gleichung ein und bestimmen die Form der auftretenden Impulse.

Mit Gleichung A.1, die zwei gefaltete Exponentialfunktionen beschreibt, wird die Impulsantwort für unterschiedliche Ladungssammelzeiten berechnet. Die Abbildung A.12 zeigt schematisch die berechneten Kurven. Alle Kurven besitzen die gleiche Energie, aber einen unterschiedlichen Anstieg. Die Simulation wurde so gewählt, dass das Maximum aller Kurven auf der abfallenden Flanke des sehr steil ansteigenden, höchsten Impulses liegt. Nur bei der Kurve in rot entspricht die Impulshöhe gleich der Energie. Alle anderen Impulse sind durch gleichzeitige Auf- und Entladung des Kondensators verrundet, so dass eine vollständige Energierекonstruktion nur über die Anwendung des MWD- und MA-Algorithmus möglich ist.




Abbildung A.12: Gezeigt ist die Verteilung der Impulshöhen bei Annahme der gleichen Impulsenergie. Nur bei dem Impuls mit dem sehr steilen Anstieg (Kurve in rot) entspricht das Maximum der Impulshöhe der Energie. Für alle anderen Impulse muss eine Auswertung mit MWD- und MA-Algorithmus durchgeführt werden, da die ansteigende Flanke durch eine gleichzeitige Auf- und Entladung des Kondensators verrundet ist.

Lebenslauf

Name	Diana Linzmaier
Geburtsdatum	22.11.1983
Geburtsort	Lutherstadt Eisleben
Ausbildung	
1990-1994	Grundschule Erdeborn
1994-2003	Gymnasium an der Bergmannsallee Lutherstadt Eisleben Abschluss: Allgemeine Hochschulreife
2003-2009	Studium der Physik an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg Abschluss: Diplom für Physik
2009-2012	Promotionsstudium an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Zusammenarbeit mit der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover
Thema der Diplomarbeit	<i>Aufbau eines Monitorsystems für gasbasierte Detektoren und Messung der Elektronenanlagerung im Kammergas</i>
Thema der Dissertation	<i>Entwicklung einer Low-Level-Radon- Referenzkammer</i>

Abbildungsverzeichnis

2.1	Zerfallsreihe von Radium-226	5
2.2	Jährliche Strahlenexposition des Menschen	6
3.1	Schematische Darstellung LL-RRK	8
3.2	Foto des Radon-Aktivitätsnormals	10
3.3	Schematische Darstellung der Emanationsquelle	12
3.4	Foto einer Emanationsquelle	13
3.5	γ -Spektrometrie-Messplatz der PTB	14
3.6	Foto des Emanationsgefäßes	15
3.7	Vergleich zweier γ -Spektren	17
3.8	Zählrate der Quelle Ra-226 2011-1777	18
3.9	Emanationskoeffizient der Quelle Ra-226 2011-1777	19
3.10	Vergleich der gemessenen Aktivitätskonzentration für Ra-226 2011-1623 im 500 L Referenzvolumen	20
3.11	Vergleich der primären Verfahren	24
4.1	Platine für VIKK	28
4.2	Foto der VIKK	29
4.3	Schaltplan des Vorverstärkers	31
4.4	Luftschallanregung	34
4.5	Frequenzspektrum der Luftschallanregung	37
4.6	Frequenzspektrum gemessen mit Beschleunigungsaufnehmer	38
4.7	Momentaufnahme der Messwerte der VIKK	39
4.8	MWD-Algorithmus	40
4.9	MA-Algorithmus	41
4.10	Energiebestimmung	42
4.11	FFT vom Zeitsignal der VIKK	44
4.12	Ausschnitt aus dem Messdatenerfassungsprogramm	45
4.13	PUR-Intervall	47
4.14	Übersicht der Messwertaufnahme	49
4.15	Energiespektrum einer Messung mit der VIKK „hoch“	51
4.16	Energiekalibrierung der VIKK „hoch“	53
4.17	Thoronmessung mit VIKK „hoch“	54
4.18	Energiespektrum von 3 Emanationsquellen gemessen mit der VIKK	55
4.19	Messwerte der VIKK und des Prüflings	56

4.20	Kreislauf LL-Fass	57
4.21	Aktivitätskonzentration einer Referenzatmosphäre	58
5.1	Primärkalibrierung der VIKK	60
5.2	α -Energiespektren der VIKK für 1 h Messzeit	63
5.3	Sekundärkalibrierung der VIKK	66
A.1	Emanationsquelle Ra-226 2011-1623	79
A.2	Emanationsquelle Ra-226 2011-1624	80
A.3	Emanationsquelle Ra-226 2010-1816	80
A.4	Verstrebungsplatine	81
A.5	Hardware zur Messdatenerfassung	82
A.6	Bestückungsplan des Vorverstärkers	83
A.7	Messung der Folgeprodukte	84
A.8	Akustische Abschirmung im Querschnitt	85
A.9	Foto der akustischen Abschirmung	86
A.10	Grafische Oberfläche der Auswertesoftware	87
A.11	Spektrum der positiven Impulse	88
A.12	Impulshöhenverteilung	89

Tabellenverzeichnis

3.1	Zusammenfassung der Emanationsquellen	21
3.2	Unsicherheitsbudget für die Nettozählraten	22
3.3	Unsicherheitsbudget für die Aktivitätskonzentration	22
4.1	Übersicht Kammermodelle	29
4.2	Gemessene Kammerkapazitäten	33
4.3	Messdaten für Totzeitberechnung	48
4.4	Zerfallsreihen von Radon-222 und Radon-220	52
5.1	Unsicherheitsbudget der Primärkalibrierung	62
5.2	Unsicherheitsbudget der Sekundärkalibrierung	64