

[^{220,222}Rn]Radon-Exposition in Innenräumen

R. J. Schwankner, A. Brummeisl, P. Höpfl, M. Mundenbruch, M. Steiner
 Fachhochschule München

Indoor Exposure to [^{220,222}Rn]Radon

The inhalation of short-lived decay products of [^{220,222}Rn]Radon accounts on the average for half of the effective dose equivalent from all natural sources of radiation. Sources of emanation/exhalation and subsequent mechanisms of indoor invasion of [^{220,222}Rn]Radon are discussed. Both seasonality of [^{220,222}Rn]Radon concentration (in- & outdoor) and the indoor ventilation rate are considered.

Key words

Outdoor/indoor radon – Exhalation – Emanation – Invasion – Natural radiation doses

Zusammenfassung

Die Inhalation kurzlebiger Folgeprodukte von [^{220,222}Rn]Radon zeichnet für die Hälfte der mittleren natürlichen Strahlenexposition – ausgedrückt in effektiver Äquivalentdosis – verantwortlich. Die Emanations/Exhalations-Quellen und die damit verknüpften Mechanismen der Invasion von [^{220,222}Rn]Radon in den Innenraum werden diskutiert. Betrachtet werden sowohl die Saisonalität der [^{220,222}Rn]Radon-Aktivitätskonzentration (in Innen- und Außenluft) als auch die Lüftungsrate von Innenräumen.

1. Einführung

Die ubiquitär in der Natur vorkommenden Isotope des Edelgases $Z = 86$ Radon und insbesondere ihre kurzlebigen Zerfallsprodukte tragen maßgeblich zur radiogenen Belastung der Lunge – vor allem des Bronchialepithels – bei. Etwa die Hälfte der natürlichen Strahlenexposition der Bevölkerung gehen auf diese selektive, inhalative Organbelastung (Alpha-Exposition) zurück (Abb. 1). Durch entsprechende Lebensgewohnheiten sowie bauliche Maßnahmen läßt sich die kumulierte Exposition dieser *Innenraumbelastung* und das möglicherweise damit verknüpfte Lungenkrebsrisiko senken. Die vorliegende Arbeit befaßt sich mit den naturwissenschaftlichen Grundlagen dieses Expositionsphänomens (1–4).

2. Radiochemie von $Z = 86$ (Radon)

Auf die Entdecker des Radiums, *M. und P. Curie*, geht die Beobachtung zurück, daß Luft, welche mit offenen Radiumpräparaten in Kontakt kommt, alle Gegenstände der Umgebung „radioaktiv“ macht. *F. E. Dorn* in Halle belegte um 1900, daß die so „induzierte“ Radioaktivität auf ein radioaktives Gas, „Emanation“ genannt, zurückzuführen ist, das seinerseits selbst als Folgeprodukt aus dem Alpha-Zerfall des Mutternuklids Radium hervorgeht. In der Folge fand *E. Rutherford* eine ähnliche Erscheinung beim Thorium („Thoriumemanation“ (5)) sowie *A. Debierne* (1905) und *F. Giesel* (1903) beim Actinium („Actinon“ (6)).

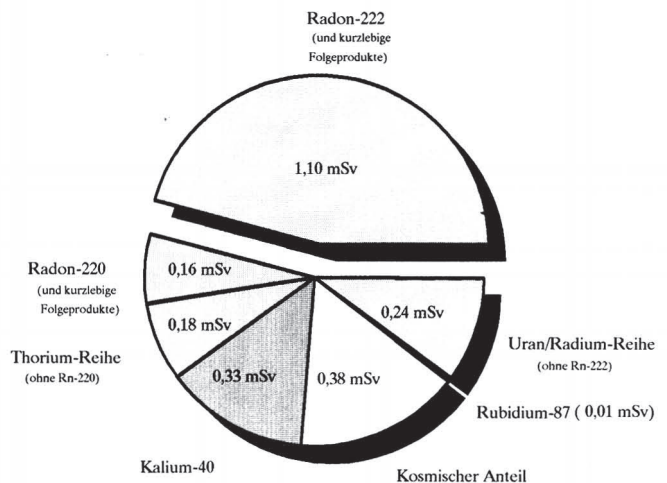


Abb. 1 Strahlenexposition aus natürlichen Quellen, bilanziert als mittlere effektive Äquivalentdosis (nach (1)).

In der weiteren Entwicklung der Radiochemie setzten sich statt der o. g. schwerfälligen Bezeichnungen die Begriffe „Radon“, „Thoron“ und „Actinon“ für die drei Emanationen durch. Bis heute wurden 28 Isotope des Edelgases Radon indiziert, welche alle radioaktiv sind und wobei das [²²²Rn]Radon („Radon“) mit 3,8 d die längste Halbwertszeit aufweist.

Für die natürliche inhalative Bevölkerungsexposition mit dem reaktionsträgen (erste chemische Verbin-

Tab.1a Nukleardaten zur 4n+2(Uran/Radium)-Zerfallsreihe

Radionuclide Decay Chain	T _r	λ _r (h ⁻¹)	Main Energies (in MeV) and Intensities		
			α	β	γ
²²² Rn ↓ α	3.823 d	7.55 · 10 ⁻³	5.49 (100 %)	-	-
²¹⁸ Po ↓ α	3.05 min	13.63	6.00 (~100 %)	-	-
²¹⁴ Pb ↓ β, γ	26.8 min	1.55	-	0.65 (50%) 0.71 (40%) 0.98 (6%)	0.295 (19%) 0.352 (36%)
²¹⁴ Bi (RaC) ↓ β, γ	19.7 min	2.11	-	1.0 (23%) 1.51 (40%) 3.26 (19%)	0.609 (47%) 1.12 (17%) 1.76 (17%)
²¹⁴ Po ↓ α	164 μs	1.52 · 10 ⁷	7.69 (100 %)	-	-

dungen von Radon wurden erst 1960 dargestellt (6) *monoatomaren* Edelgas und seinen Folgeprodukten sind aufgrund ihres unterschiedlichen Vorkommens, ihren Zerfallseigenschaften (Zerfallsenergie und Halbwertszeit) besonders die Isotope [²²²Rn] und [²²⁰Rn]Radon („Thoron“, t_{1/2} = 55,6s) von Bedeutung. Sie gehen als Glieder der sog. 4n+2(„Uran-Radium“) und 4n(„Thorium“) Zerfallsreihe aus primordialem [²³⁸U]Uran (natürliche Isotopenhäufigkeit H = 99,275%) sowie [²³²Th]Thorium (H = 100%) hervor (Abb. 2, Tab. 1a, b).

Das aus der 4n+3(„Uran-Actinium“) Zerfallsreihe als radiogenetisches Folgeprodukt von [²³⁵U]Uran hervorgehende [²¹⁹Rn]Radon („Actinon“) wird sowohl aufgrund der geringen Isotopenhäufigkeit des Startnuklids der Zerfallsreihe (H = 0,720%) und seiner kurzen Halbwertszeit (t_{1/2} (²¹⁹Rn) = 3,96s) nicht in die weiteren Betrachtungen einbezogen.

3. Omnipräsenz und Zerfall von Z = 88 (Radium)

Die radiogenetischen Startnuklide der Zerfallsreihen, aus welchen [^{220,222}Rn]Radon hervorgehen, treten als primordiale natürliche Bestandteile in allen Böden – [²³⁸U]Uran zu ca. 5 ppm und [²³²Th]Thorium zu ca. 10 ppm (7, 8) – auf. Aus ihnen gehen die unmittelbaren Mutternuklide der Radon-Isotope [^{224,226}Ra]Radium hervor (Abb. 2).

Je nach den lokalen geochemischen Verhältnissen der Bodenmatrix kann es dabei zur Einstellung eines raumzeitlichen Gleichgewichts zwischen ²³⁸U/ ²²⁶Ra bzw.

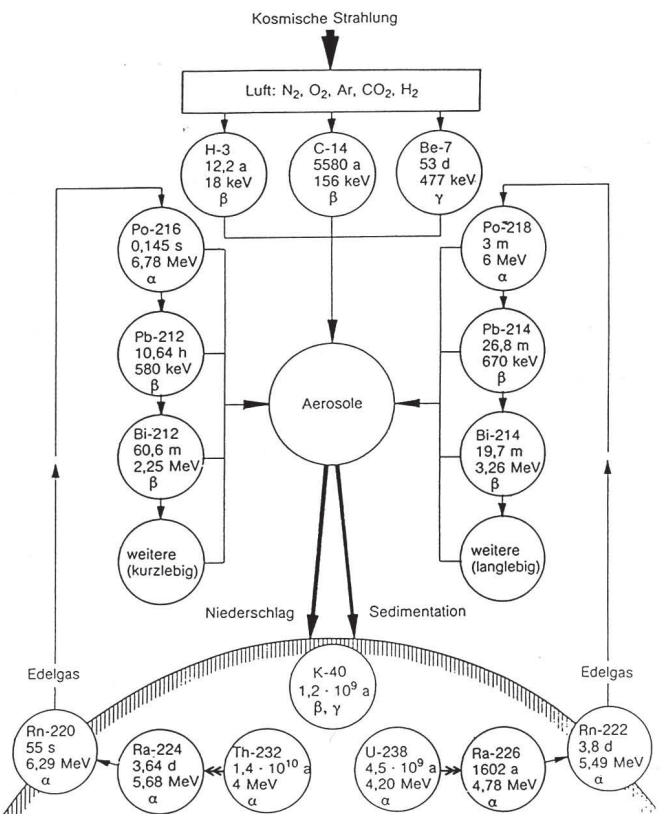


Abb. 2 Generation und Exhalation von [^{220,222}Rn]Radon.

Tab. 1b Nukleardaten zur 4n(Thorium)-Zerfallsreihe

Radionuclide Decay Chain	T _r	λ _r (h ⁻¹)	Main Energies (in MeV) and Intensities		
			α	β	γ
²²⁰ Rn ↓ α	55 s	45.36	6.29 (100%)	-	0.55 (0.07%)
²¹⁶ Po ↓ α	0.15 s	1.66 · 10 ⁴	6.78 (100%)	-	-
²¹² Pb ↓ β, γ	10.64 h	0.06514	-	0.346 (81%) 0.586 (14%)	0.239 (47%) 0.300 (3.2%)
²¹² Bi 64% β, γ 36% α	60.6 min	0.686	6.05 (25%) 6.09 (10%)	1.55 (5%) 2.26 (55%)	0.040 (2%) 0.727 (7%) 1.620 (1.8%)
²¹² Po (ThC') ↓ α	304 ns	8,21 · 10 ⁹	8.78 (100%)	-	-
²⁰⁸ Tl (ThC'') ↓ β, γ	3.10 min	13.41	-	1.28 (25%) 1.52 (21%) 1.80 (50%)	0.511 (23%) 0.583 (86%) 0.860 (12%) 2.614 (100%)

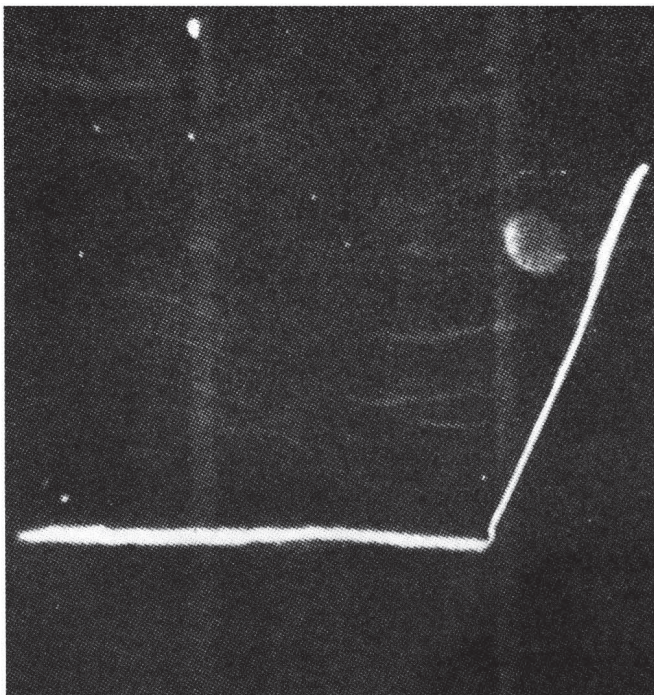
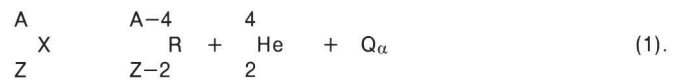


Abb. 3 Sukzessiver Alpha-Zerfall (Δt = 0,15 s) von [²²⁰Rn]Radon und seinem Tochterprodukt [²¹⁶Po]Polonium, aufgenommen in einer kontinuierlichen Nebelkammer (E_α = 6,29 (100%), E_α = 6,78 MeV (100%); aus (9); aufgenommen von R. J. Schwankner, Ch. Wimmer und G. Lieckfeld).

²³²Th/ ²²⁴Ra kommen oder durch örtliche Verfrachtung der z. B. wassergetragenen Radium-Isotope wird dieser Zustand nicht erreicht. Beim Zerfall der Radium-Isotope beider Zerfallsreihen wird – chemisch gesehen – die natürliche Elementtransmutation von einem schweren Erdalkalimetall (Z = 88, Ra) zu einem in monoatomarer Dispersion auftretenden Edelgas (Z = 86, Rn) vollzogen.

Die bei der Alpha-Umwandlung der Radium-Isotope (1) freiwerdende Energie (Q_α) wird dabei auf das emittierte Alpha-Teilchen (E_α(He-4)) und den entstehenden schweren Radon-Rückstoßkern (E_R) übertragen (A = Nukleonenzahl, Z = Ordnungszahl) (2):



Unter nichtrelativistischer Bilanzierung des Impuls- und Energieerhaltungssatzes der Zerfallsprozesse (1)

$$E_{\alpha} = Q_{\alpha} \frac{m \left(\begin{matrix} A-4 \\ Z-2 \end{matrix} R \right)}{m \left(\begin{matrix} 4 \\ 2 \end{matrix} He \right) + m \left(\begin{matrix} A-4 \\ Z-2 \end{matrix} R \right)} \quad (2)$$

ergibt sich, daß nahezu die gesamte Zerfallsenergie (98–99% Q_α) auf das Alpha-Teilchen übertragen wird. Die Rückstoßenergie, welche in der Größenordnung von 100 keV liegt, kann so für den Übertritt von entstehendem [^{220/222}Rn]Radon

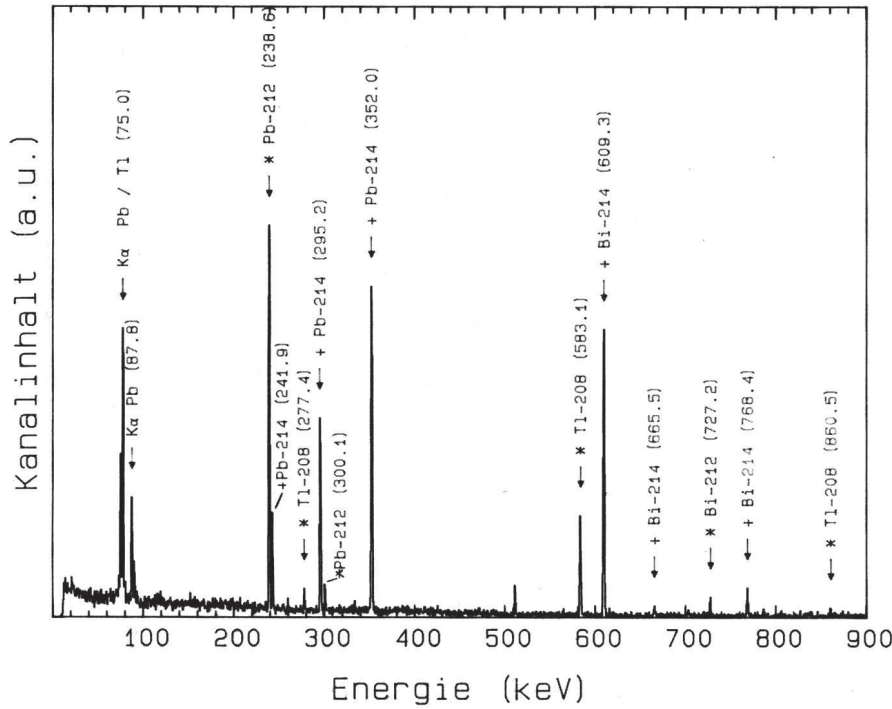


Abb. 4 Gammaskopie einer Wischprobe von kathodischer elektrostatischer Deposition ($U_{\text{Abscheidendraht}} = -1,5 \text{ kV}(=)$) der kurzlebigen Folgeprodukte von $^{220,222}\text{Rn}$]Radon (primär $^{212,214}\text{Pb}$]Blei) aus Innenraumlufte ($t_{\text{Depo}} = 70 \text{ h}$; $t_{\text{Start}} = 60 \text{ s}$ nach Probengewinnung; $t_{\text{Mess}} = 1.200 \text{ s}$; die indizierten Glieder der Uran/Radium (+) und Thorium-Reihe (x) sind entsprechend gekennzeichnet; A. Brummeisl, BRK-Radiometrie, Traunreut: 27.5.–29.5.91).

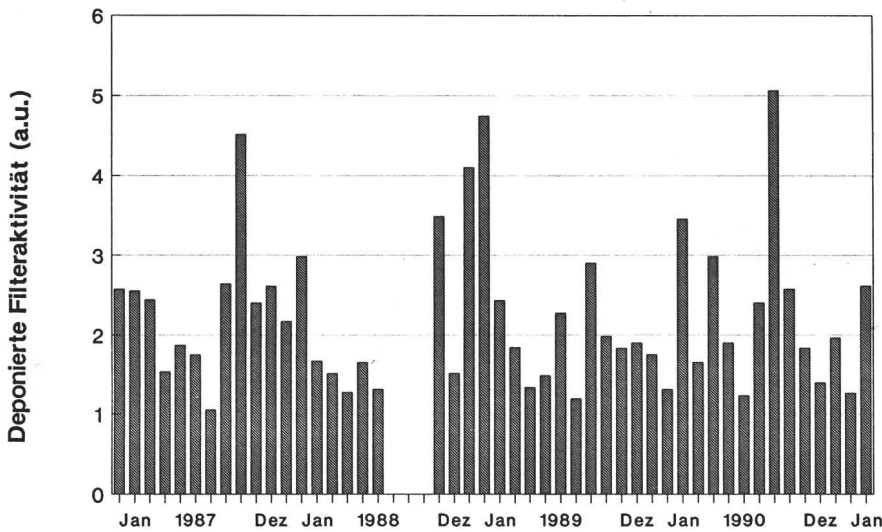


Abb. 5 Monatliche Zufallsstichprobe von luftgetragenen, aerosolgebundenen kurzlebigen $^{220,222}\text{Rn}$]Radon-Folgeprodukten, als Filterdeposition; (Sammler: Staplex TF 1A-2; Filter: Schleicher & Schuell Nr. 100/Ref. Nr.: 311609, $\varnothing = 90 \text{ mm}$; $t_{\text{Sammel}} = 90 \text{ min}$; P. Höpfl, BRK-Radiometrie, Starnberg).

(R!) in die Bodenporen verantwortlich zeichnen (Emanierverhalten) (9).

An den Grenzflächen *Bodenpartikel/Luft/Bodenpartikel* bzw. *Bodenpartikel/Bodenlösung/Bodenpartikel* kann so durch Rückstoßinjektion der direkte bzw. indirekte Übertritt des Folgeprodukts Radon in das jeweilige Bodenmedium eingeleitet werden (Emanierung), es schließt sich Transport und Übertritt in die bodennahe Luft (Exhalierung) des noch nicht zerfallenen Radonanteils an, welcher dann, je nach Wegsamkeit bzw. Transportmedium (z. B. CO_2) horizontal bzw. vertikal verfrachtet wird (10). Diese mechanistischen Aussagen gelten im Prinzip auch für dem Boden entnommene mineralische Baurohstoffe und ihre Zubereitungen.

Die Wegstrecken, welche derartige Rückstoßatome in der Matrix von soliden Bodenpartikeln zurückzule-

gen im Stande sind, liegen in der Größenordnung von $1-3 \cdot 10^{-8} \text{ m}$ (11).

Die Aktivitätskonzentration von ^{226}Ra]Radium in der Matrix von schwedischen Ackerböden wurde zu $15-360 \text{ Bq/kg}$ und der daraus resultierende Wert der Aktivitätskonzentration in der Bodenluft an ^{222}Rn]Radon zu $5-200.000 \text{ Bq/m}^3$ bestimmt, wobei der jeweils obere Wert auf den Bodenbestandteil „uranreicher Granit“ zurückzuführen sein dürfte (12).

4. Exhalation und Zerfall von $Z = 86$ (Radon)

Die überwiegend durch Rückstoßinjektion in die Bodenporen vorgedrungenen Radon-Atome haben nun, je nach Halbwertszeit des entsprechenden Nuklids sowie ihrem/n Diffusionsweg und -bedingungen die prinzipielle Chance, die Bodenoberfläche zu erreichen, um in die freie At-

Tab. 2 Spezifische Aktivitäten/Konzentrationen (nach Dichtekorrektur der Selbstabsorption) von indizierten Gliedern (Abb. 4, 6) der 4n+2(Uran/Radium)- und 4n(Thorium)-Zerfallsreihe ausgewählter Baustoffe/-rohstoffe (BRK-Radiometrie Traunreut, 1990/91)

Probe Nr.	Bezeichnung (Ort)	Rohdichte g/cm ³	Th 234 + Bq/kg	Pb 214 + Bq/kg	Bi 214 + Bq/kg	U 238 (als Th 234) ppm	Ac 228 * Bq/kg	Bi 212 * Bq/kg	Th 232 (als Ac 228) ppm	K 40 Bq/kg	Kalium ppm
01	Kalksand Amberg (Obpf.)	2,27	124	65	57	10	101	63	25	1461	31210
02	Granitgestein Girnitz (Obpf.)	2,63	52570	56470	53920	4360	<1	<1	<1	691	20530
03	Lehm Rötz (Obpf.)	2,64	115	41	37	10	54	39	13	651	13910
04	Lehm Freising	2,65	160	49	47	13	62	40	15	861	18390
05	Quarz-Sand Hirschau (Obpf.)	2,61	44	21	22	4	30	18	7	576	12300
06	Kies Freising	2,58	59	29	23	5	4	3	1	163	3480
07	Ziegel Freising	2,49	78	66	55	6	49	35	12	611	13050
08	Knorpel-Gips Rohrdorf	2,45	61	21	18	5	6	3	2	255	5450
09	Rea-Gips Zolling	2,06	21	5	5	2	2	1	1	16	342
10	Kalkgemisch Rohrdorf	2,51	76	27	23	6	17	12	4	276	5900
11	Hüttensand Zolling	2,55	197	43	81	16	40	29	10	242	5170
12	Sand Bruck (Obpf.)	2,42	46	17	13	4	18	12	4	1045	22320

mosphäre überzutreten (Exhalation). Für $[^{222}\text{Rn}]\text{Radon}$ ($t_{1/2} = 3,8\text{ d}$) ergibt sich so bei ungestörter Diffusion in den Bodenporen für die Exhalation in die bodennahe Luft noch ein namhafter Beitrag aus Bodentiefen bis zu 2 m; die um den Faktor 6.000 kleinere Halbwertszeit von $[^{222}\text{Rn}]\text{Radon}$ ($t_{1/2} = 55,6\text{ s}$) bedingt, daß sein entsprechender Beitrag nur bis zu 2 cm Diffusionsweg (Bodentiefe) verzeichnet wird (Tab. 1a, b) (8).

In beiden Zerfallsreihen (Abb. 2) wandelt sich das jeweilige Radon-Isotop sodann unter sukzessiver Emission von zwei Alpha-Teilchen um. Im Falle von $[^{220}\text{Rn}]\text{Radon}$ werden so innerhalb von 0,15 s zwei Alpha-Emissionen erfolgen, was in Abb. 3 durch Nebelkammeraufnahmen der entsprechenden Ionisationsspuren im Absorber Luft registriert wird (5). Wendet man auf diese Alpha-Umwandlungen der jeweiligen Radon-Isotope nunmehr Gleichung (2) an, so ergibt sich, daß die kinetische Energie der entstehenden Schwermetall-Rückstoßatome bedingt, daß diese (mittlere freie Weglänge in der Atmosphäre ca. 10^{-4} m) durch Zusammenstoß mit umgebenden Gasmolekülen der Luft Stoßionisation erleiden und somit vorübergehend als *Kationen in der Gasphase* auftreten.

Diese Kationen können z. B. auf einem negativ geladenen, in der freien Atmosphäre gespannten Draht ($\varnothing = 0,2\text{ mm}$) infolge der hohen Radialfeldstärke elektrostatisch deponiert werden (5, 13). Abb. 4 zeigt so in Verbindung mit Tab. 1 das Gamma-Spektrum einer Wischprobe eines derartigen Innenraumexperiments elektrostatischer Deposition,

es werden sowohl Glieder der 4n- also auch der 4n+2-Zerfallsreihe, welche auf die jeweiligen luft- bzw. aerosolgetragenen Radon-Isotope folgen, detektiert (Tab. 1a, b).

Die beim Zerfall des Radons in der Raumluft entstehenden kurzlebigen, atomar dispergierten Kationen der Schwermetalle $Z = 84$ (Polonium), $Z = 83$ (Bismut), $Z = 82$ (Blei) lagern sich sehr schnell an luftgetragene Aerosole an (Abb. 2). Diese nehmen – wie das Radon-Gas – an atmosphärischen Transportvorgängen teil. Darüber hinaus verfügen sie mit „wash-out“ und „Trockendeposition“ über zusätzliche Senken.

Durch die unfreiwillige Filterung der Atemluft werden die kurzlebigen Folgeprodukte des Radon-Zerfalls, die Alpha-Strahler $[^{212,214,216,218}\text{Po}]\text{Polonium}$, $[^{212}\text{Bi}]\text{Bismut}$ (Zerfallsverzweigung 36%) und die Beta-Strahler $[^{212,214}\text{Bi}]\text{Bismut}$ ($[^{212}\text{Bi}]\text{-Zerfallsverzweigung 64%}$) $[^{212,214}\text{Pb}]\text{Blei}$ im Zuge der Inhalation in der Lunge abgeschieden und angereichert (Abb. 2, Tab. 1a, b). Wegen ihrer relativ kurzen Halbwertszeiten zerfallen sie zum großen Teil am Depositionsort und legen damit die Grundlage für die lokal hohe radiogene Organbelastung. Der Radongehalt der Außenluft hängt von einer Vielzahl von Parametern ab; zum einen sind dabei die Emanier- und Exhalationsparameter aufzulisten:

- Aktivitätskonzentrationen von $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ und $^{232}\text{Th}/^{224}\text{Ra}$ in Bodenpartikeln,
- *mineralogische Bodenzusammensetzung*,

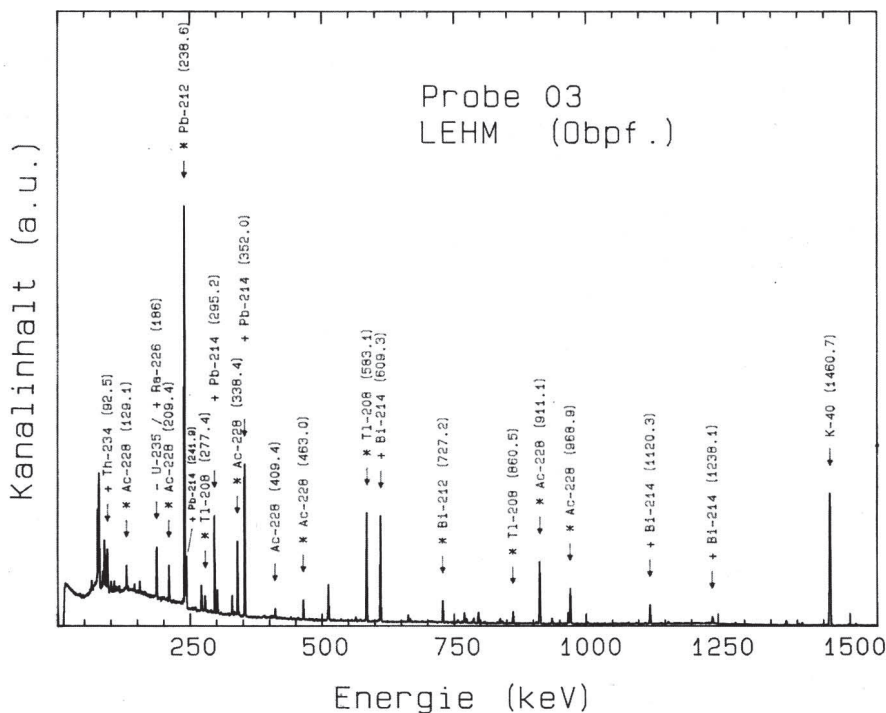


Abb. 6a

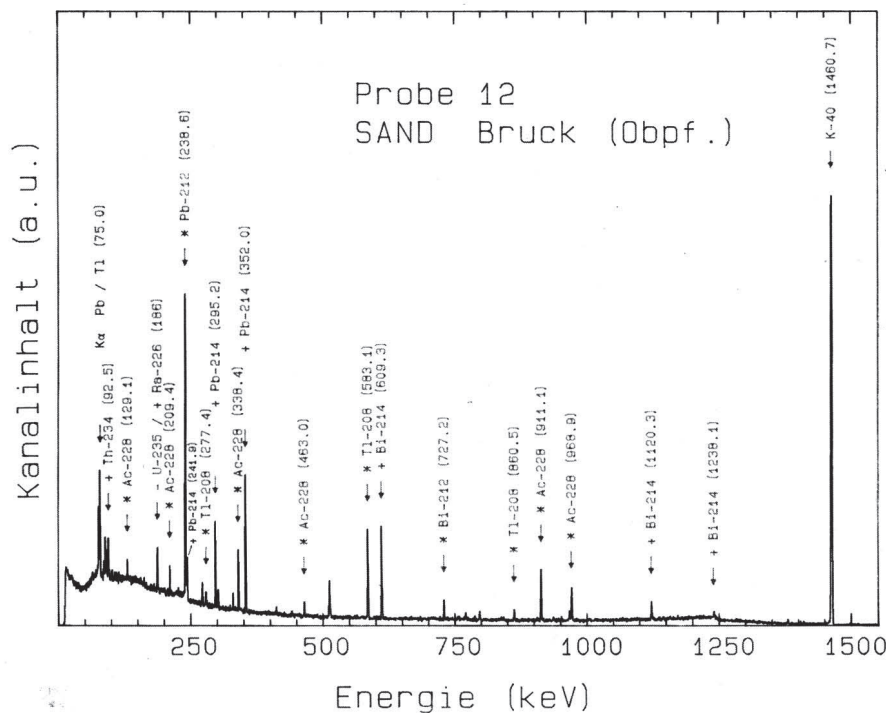


Abb. 6a, b Gammaspektren von Baurohstoffen/-stoffen (bez. spezifischer Aktivitäten s. Tab. 2/Probe 3, $t_{\text{Meß}} = 50.000 \text{ s}$ bzw. 12, $t_{\text{Meß}} = 30.000 \text{ s}$), die Emissionslinien sind analog der Notierung von Abbildungslegende 4 markiert (aufgenommen von M. Steiner, BRK-Radiometrie, Traunreut).

- Bodentemperatur, -feuchte, -porosität,
- Bodenvorbehandlung (z. B. Erschließungsmaßnahmen),
- Bodenauflage (Laub, Schnee, Matsch) und
- äußerer Luftdruck,

- Zustrom aktivitätsarmer Luft (Seeluft; Luft über Binnengewässern),
- Luftfeuchte und
- Aerosolgehalt.

des weiteren die atmosphärischen Ausbreitungsparameter

- Luftströmungen (horizontal, vertikal; lokal und global),
- Lufttemperatur, -druck,

Abb. 5 zeigt die Auswertung von Aerosolfiltern, welche im Zuge von Routineuntersuchungen als monatliche Zufallsstichproben im radiometrischen Labor des BRK (Garatshausen) am Ufer des Starnberger Sees seit 1987 gewonnen wurden. Die Variationsbreite der deponierten aero-

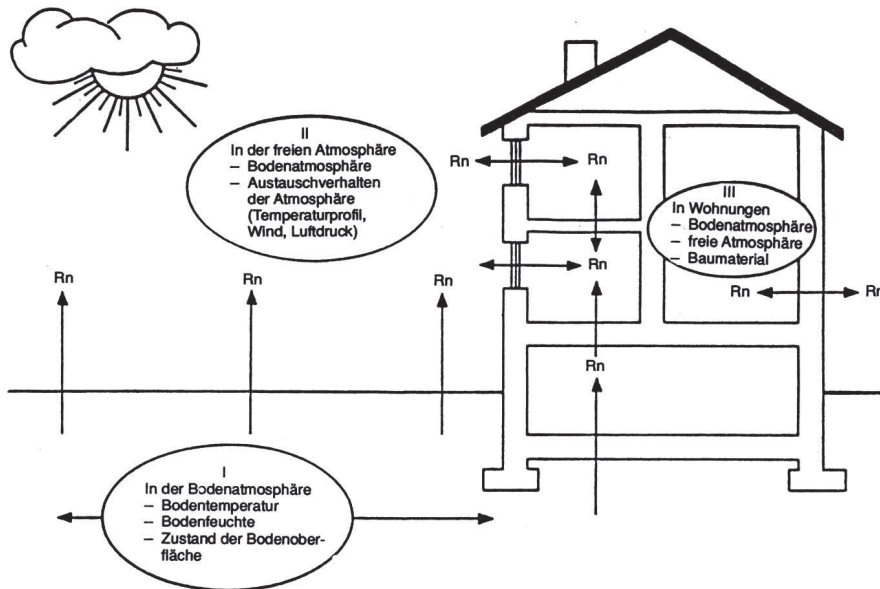


Abb. 7 Einflußgrößen auf und Eintrittspforten für die Radon-Invasion in Innenräumen (aus BfS-Infoblatt Nr. 6 (1990)).

solgebundenen Aktivität der kurzlebigen Radon-Folgeprodukte bis zum Faktor 5 wird so dokumentiert. Eine Zuspierung entsprechender Parameter zur vorliegenden Zeiterie, wie z. B. Windrichtung (Eintrag aktivitätsarmer Luft des Starnberger Sees), Luftdruck, -feuchte, -temperatur zeigen weder im Einzelfall noch in Kombination eine einfache Korrelation mit den aufgefundenen Aktivitätswerten.

Allerdings sind bestimmte Phänomene z. B. der Eintrag aktivitätsarmer Luft (Minima der Luftaktivität) oder Tauwetterperioden (Maxima der Luftaktivität) infolge von schlagartiger Freisetzung von in der Bodenaufgabe (Matsch) zurückgehaltener Aktivität evident.

Die Medianwerte der [^{222}Rn]Radon-Aktivitätskonzentration in der Freiluft liegen zwischen 8 (Land Schleswig-Holstein, RB Weser-Ems) und 30 Bqm^{-3} (RB Stuttgart, RB Tübingen); die ermittelten Daten beziehen sich auf Integrationszeiten von mehreren Monaten) (11).

Erwartungsgemäß liegen bez. des kurzlebigen [^{220}Rn]Radon weltweit nur wenige Daten vor, die berichteten Aktivitätskonzentrationen der Außenluft liegen hier zwischen 2–10 Bqm^{-3} (1). Bez. Radon-Meßmethodik sei z. B. auf (15a–c) verwiesen.

5. Quellen und Antransport von $Z = 86$ (Radon)

Nach Erhebungen in ca. 6.000 bundesdeutschen Wohnungen ((16) 1985) ergibt sich ein arithmetischer Mittelwert der Radonkonzentration von annähernd 50 Bqm^{-3} , was einem Mehrfachen der mittleren Aktivitätskonzentration der Außenluft entspricht (17, 18).

Wegen des herabgesetzten Luftumsatzes ist den Quellen von Radon und seinen kurzlebigen Folgeprodukten in Innenräumen erhebliche Aufmerksamkeit zu widmen. Im Bereich der Quellen unterscheidet man im wesentlichen zwischen

- Trinkwasser,
- Baumaterialien,
- Bauuntergrund und
- Sonderquellen.

Nachdem eine hohe Übertrittswahrscheinlichkeit zwischen dem im Trinkwasser physikalisch gelösten Edelgas Radon und der Innenraumluft beobachtet wird, ließen sich Werte des entsprechenden Pegelanstiegs von 1 Bqm^{-3} (Innenraumluft) pro 10.000 Bqm^{-3} im Trinkwasser in den Schweizer Zentralalpen ermitteln (10). Besonders bei der Erwärmung nicht unter Druck stehenden Wassers (Dusch-, Badewasser) können kurzfristig beträchtliche Pegelanstiege dokumentiert werden.

Der Pegelbeitrag von mineralischen Baustoffen geht auf den o. g. Übertritt, die sog. Emanierung mit anschließender Exhalation aus porösen Materialien zurück, wobei der emanierende Anteil materialabhängig zwischen 1–80% variieren kann (1). Der diffusionskontrollierte Transport an die Materialoberfläche aus der – je nach Beschaffenheit des Interfaces – Baustoff/Innenraumluft – erfolgen kann, wird als Exhalation (Übertritt in die umgebende Luft) bezeichnet.

Die Exhalationsrate wird in $\text{Bqm}^{-2}\text{h}^{-1}$ notiert und gibt an, wieviel Radonotope pro Zeiteinheit das Interface passieren, ihre Werte können materialabhängig zwischen 0,0002–0,07 $\text{Bqm}^{-2}\text{h}^{-1}$ – also bis um den Faktor 350 – schwanken (1, 19).

Der Radiumgehalt der Baustoffe ist jedoch im Regelfall nicht die dominierende Quelle, da er schon rein numerisch allein die hohen Radon-Konzentrationen in Innenräumen nicht erklärt (10, 18, 20, 21).

Allerdings ist zu berücksichtigen, daß in bestimmten Regionen mit hohem geologischen Urananteil dort lokal abgebaute mineralische Rohstoffe (z. B. fränkischer Bursandstein mit bis zu 900 ppm Urangehalt) diese oder entsprechendes Haldenmaterial früher als Bau- bzw. Füllstoff

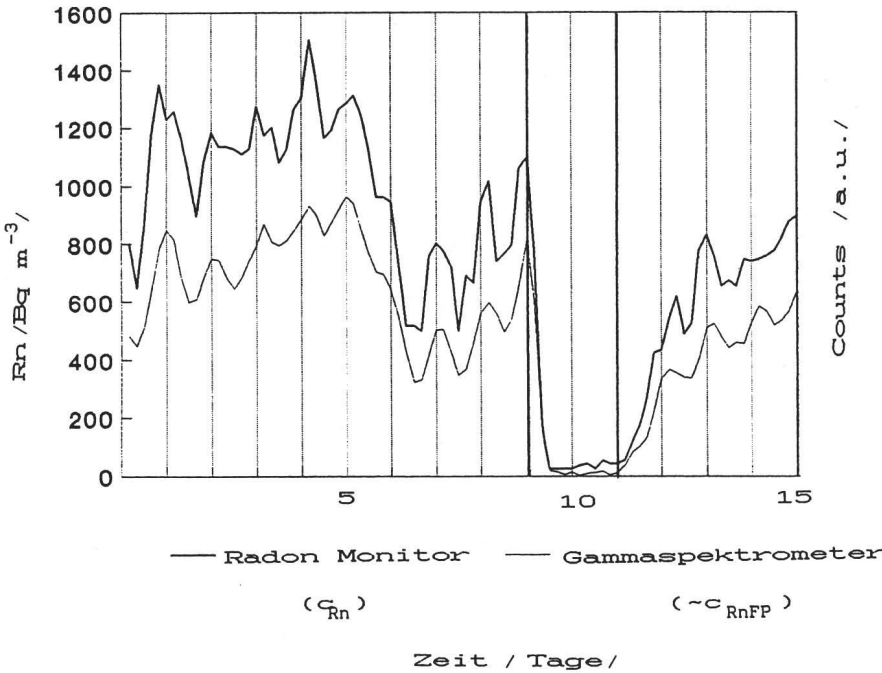


Abb. 8a, b Zeitserien der Aktivitätskonzentration von Radon und seinen Folgeprodukten (17.5.–1.6.91; Radon-Monitor, Honeywell, Modell 05-418; Gammaskpektrometer (NaI(Tl), Nucleus Modell 800 a) in der Innenraumluft eines Hobbyraumes (17,8 m³) im Kellergeschoß eines in München-Untermenzing gelegenen Hauses; markiert ist jeweils der Zeitpunkt 10.00 Uhr vormittags, die Datenpunktfrequenz betrug für C_{Rn}/C_{RnFP} 6/24 h. Das Signal der Alpha-Aktivität vom Mutternuklid Radon läuft erwartungsgemäß dem, der durch ihre Gammaemission erfaßten Folgeprodukte voraus bzw. wegen der 4-h-Meßperiodik parallel. Ebenfalls aufgetragen sind die beiden, mit den Aktivitätskonzentrationen korrelierenden Parameter ΔT und Δp (s. Text). Am 9. Tag wurde ein Kipfenster geöffnet (am 11. verschlossen), deutlich zeichnet sich die Pegelabsenkung und danach der Wiederaufbau ab (aufgenommen von M. Mundenbruch und R. J. Schwankner).

Abb. 8a

(z. B. Pechkohlschlacke zum Auffüllen von Fehlböden oberbayerischer Bauernhäuser) zur Anwendung kam. So zeigt etwa Tab. 2 neben der Aktivitätskonzentration von [⁴⁰K]Kalium die entsprechenden Werte für [²³⁸U]Uran, [²³²Th]Thorium und die jeweiligen Folgeprodukte in Bauroh- und Baustoffen auch aus dem Bereich des ehemaligen Flußspatreviers der Oberpfalz. Zwei typische Gamma-Spektren derartiger Materialien unterschiedlicher Provenienz sind in Abb. 6 wiedergegeben.

Fälle lokaler geologischer Vorkommen, welche direkt (oder über den Umweg von *Halden*) zur Verwendung von hochexhalierenden Baumaterialien geführt haben, sind nicht nur in der Oberpfalz (Spitzenwerte im Einzelfall bis zu 20.000 Bqm⁻³ im Innenraum) erfaßt worden, sondern im Bereich des Uranbergbaus der ehemaligen DDR sind in jüngster Zeit lokal begrenzt Fälle deutlich höherer Aktivitätskonzentrationen bekanntgeworden (35). Hier liegt also der bislang selten beobachtete Fall vor, daß das Baumaterial selbst als nicht zu vernachlässigende Quelle in Erscheinung tritt.

Die früheren bundesdeutschen (4, 16) und schweizerischen Erhebungen (10) belegen insbesondere den Trend, daß die Aktivitätskonzentration vom Kellergeschoß ausgehend, in den oberen Stockwerken monoton abnimmt. Dies stützt die These, daß in der Regel die „Hauptradonquelle“ im Sinne einer Eintrittspforte für passiven wie konvektiven Transport das Fundament bzw. die Bodenplatte von Häusern (abgesehen von o. g. Sondersituation) darstellt. Insbesondere dort werden Radon-Isotope im Zuge der Kaminwirkung des Hauskörpers durch Risse sowie nicht sorgfältig abgedichtete Rohr- und Leitungsdurchführungen (quasi als Eintrittspforten) in den Innenraum transportiert (Abb. 7). Relativ wenig ist derzeit über sog. Sonderquellen bekannt, denke man nur an die weite Verbreitung so unterschiedlich emanierender wie exhalierender radioaktiver Alltagsgegenstände, z. B. radiumhaltige Leuchtmassen und spezielle Uranglasuren (10, 22, 23), dies ist Gegenstand laufender Untersuchungen.

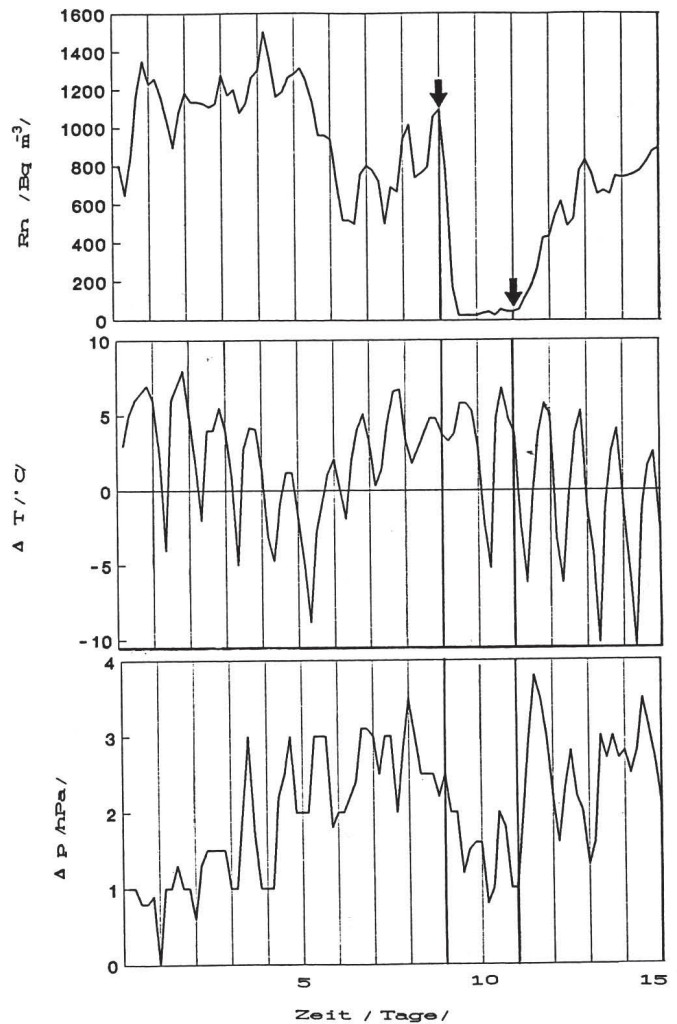


Abb. 8b

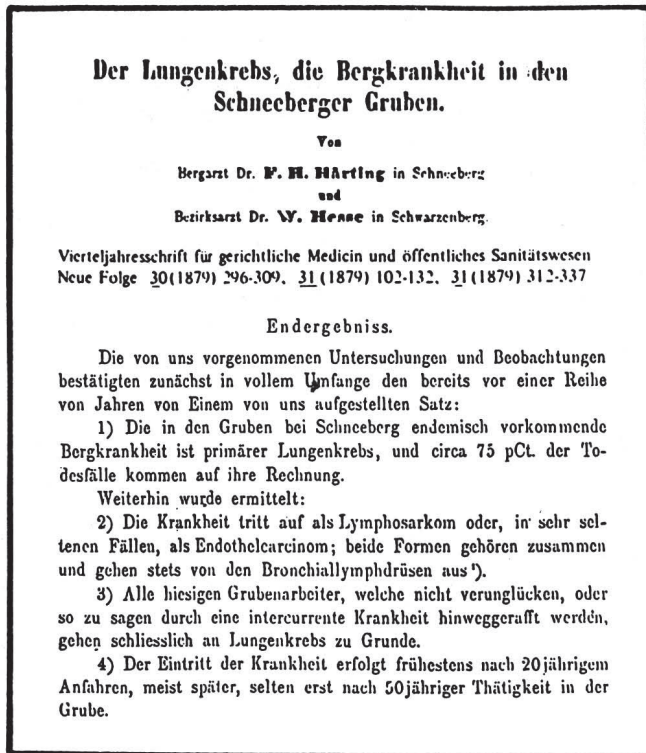


Abb. 9 Zusammenfassung der Originalveröffentlichung von F. Härtling und W. Hesse zur „Bergkrankheit in den Schneeberger Gruben“ (nach (31)).

76. Saisonalität der Invasion

Bis 1983 lagen nur wenig Daten über die saisonale Variation des Radonpegels in Innenräumen vor (24). Eine EPA-Studie die 20 Häuser in Montana über 18 Monate einschloß, kam zu dem Ergebnis, daß ein „overall“ Jahreszyklus existiert, mit niederen Werten in den wärmeren Monaten und einem Pegelmaximum in den Wintermonaten, in welchen eine geringere aktive Lüftungsfrequenz vorherrscht. Frostperioden sowie der Einfluß von Klimaanlage, welche den Aerosolgehalt der Innenraumluft zu beeinflussen scheinen, werden dokumentiert (25).

Um variable Parameter, welche aktuelle Punktmessungen in Innenräumen beeinflussen können, in den Griff zu bekommen, sind darüber hinaus detaillierte Kenntnisse über den Tagesgang notwendig. Da diese Zyklen nahezu synchron in allen Stockwerken – zumindest solange keine Lüftungsbedingten Störungen auftreten – beobachtet werden können, muß der vertikalen Ausbreitungsströmung eine dominierende Rolle zuerkannt werden. Hervorstechend ist eine 24-h-Periodik mit Minima am frühen Morgen und Pegelmaxima am späten Nachmittag. Für den konvektiven Antransport durch die Eintrittspforten des Interfaces (Fundament, Kellerbodenplatte) und die vertikale Verfrachtung im Haus sind zeitabhängige Parameter $X(t)$ (X = Luftdruck, -temperatur) im komplexen Zusammenspiel verantwortlich

$$X(t) = X(t)_{\text{innen/Keller}} - X(t)_{\text{innen/l. Stock}} \quad (3a)$$

$$X'(t) = X(t)_{\text{innen}} - X(t)_{\text{außen}} \quad (3b)$$

In Abb. 8 sind entsprechende Zeitserien eines, in einem Kellergeschoß gelegenen, genutzten Hobbyraums eines Hauses in München-Untermenzing wiedergegeben. Ausgeprägt zeigt sich eine 24-h-Periodik der Radon/Radon-Folgeprodukt-Konzentration (c_{Rn}/c_{RnFP}); erfaßt durch zwei unabhängige Verfahren (In-situ-Alpha- und -Gammasspektroskopie). Während Maxima der Temperaturdifferenz (ΔT gemäß (4b)) jeweils gegen 6.00 Uhr beobachtet werden, zeigen sich die Maxima der c_{Rn}/c_{RnFP} etwas zeitverzögert, jedoch noch am Vormittag. Überlagert wird diese Phänomenologie zudem durch zeitliche Variation der Druckdifferenz (Δp gemäß (3b)) hier korreliert ein Δp -Minimum – ohne große Zeitverzögerung – mit dem Maximum des Radon-/Radon-FP-Pegels.

Ein Lüftungsexperiment (Abb. 8) zwischen dem 10. und 12. Tag (Kippen eines der beiden, in einem Lichtschacht (Tiefe: 1 m) gelegenen Fensters) führt zu einer langsamen Pegelabsenkung im ungeheizten Raum bis um den Faktor 50. Nach dem Schließen des Fensters baut sich c_{Rn}/c_{RnFP} langsam wieder auf und erreicht dann den durch die zu diesem Zeitpunkt vorherrschenden mikroklimatischen Bedingungen bestimmten Pegelwert. Bisher ist es jedoch nur unter den Randbedingungen unbewohntes Haus und bei nicht zu großen Windgeschwindigkeiten ($< 1 \text{ ms}^{-1}$) gelungen, qualitative Korrelationen zwischen Radon-Pegel und o. g. Parametern unter Einbeziehung der Luftfeuchtigkeit und des Aerosolgehalts herzustellen. Dabei kann festgestellt werden, daß die Tagesamplituden des Radon-Pegels in Innenräumen das 5- bis 10fache des Minimalwertes annehmen können.

7. Lüftungsverhalten und Innenraumbelastung

In den letzten Jahren wird zunehmend dem Innenraum Beachtung geschenkt, welcher bislang nicht zum Kernbereich klassischer Umweltpolitik zählte, was aus Sicht seines umwelthygienischen Stellenwerts nunmehr zu begrüßen ist. Erhebungen in den USA, Europa und den industrialisierten Ländern zeigen nämlich, daß die Menschen sich zu 70–90% eines 24-h-Tages in Innenräumen aufhalten (26). In klimatisierten Innenräumen sind eben neben den „Komponenten der thermischen Behaglichkeit“ auch „Hygienekomponenten“ zu berücksichtigen. Schon 1982 berichtete H. Schmier über den Anstieg des Radon-Pegels um den Faktor 8, 15 h nach zuvor geöffneten Fenstern (27). Des weiteren ist darauf hinzuweisen, daß der Versuch unter lufthygienischen Aspekten so ein optimales Raumklima unter gleichzeitiger Vermeidung von Energieverlusten zu schaffen, zu § 1(2) des „Gesetzes zur Einsparung von Energie in Gebäuden“ (zuletzt geändert am 20.6.1980) bei unüberprüfter Anwendung in Widerspruch stehen kann:

„... Bei der Begrenzung von Lüftungswärmeverlusten ist der gesamte Einfluß der Lüftungseinrichtungen, der Dichtigkeit von Fenstern und Türen sowie der Fugen zwischen den einzelnen Bauteilen zu berücksichtigen...“

Setzt man als quantitatives Merkmal für den Luftaustausch in Innenräumen das stündlich einem Raum zugeführte Luftvolumen (V) bezogen auf das Raumvolumen (L) an, so erhält man als Kenngröße die Luftwechsellzahl n , welche in der Praxis zwischen 0,1 und 0,8 variiert.

$$n = v/L[h^{-1}] \quad (4).$$

Schon Mitte der 80er Jahre war so aufgefallen, daß die passive Raumbelüftung im Zuge von Energieeinsparbestrebungen etwa durch die Einführung von doppelten Kunststofflpendichtungen bei Fenstern und entsprechende weitere Maßnahmen bis um den Faktor 5 zurückgehen kann (11, 28). Damit einher geht das Ansteigen der Pegel für eine Reihe atom- bzw. molekulardispers und/oder aerosolgetragener Komponenten in der Innenraumluft, wie z. B. Radon-Isotope, Organohalogene (PCP, PCB, PCDF/D), Lösemittel, Kunststoff-Monomere... (26, 27, 29).

8. Mögliches Lungenkrebsrisiko infolge kumulierter ^{222}Rn]Radon-Exposition

Unter kumulierter Exposition ist das Produkt aus Aktivitätskonzentration in der Raumluft und der mittleren Aufenthaltszeit in Innenräumen zu verstehen. Der o. g. Mittelwert für 6.000 bundesdeutsche Wohnungen beträgt für ^{222}Rn]Radon 50 Bqm^{-3} (16) (der Beitrag des kurzlebigen ^{220}Rn]Radon findet in erster Näherung keine Berücksichtigung). Bedingt durch Deposition auf Oberflächen sowie Luftaustausch zwischen Innen- und Außenraum ist die Aktivitätskonzentration der kurzlebigen Radon-Folgeprodukte in der Raumluft niedriger als die des Mutternuklids, beide stehen über einen sog. „Gleichgewichtsfaktor (F)“ – im betrachteten Fall $F = 0,3$ – zueinander in Beziehung. *W. Jacobi* (17) legt für entsprechende Abschätzungen sowohl diesen F-Wert, wie im Mittel täglich eine 80%ige Aufenthaltszeit in Innenräumen zugrunde. Für die „gleichgewichtsäquivalente“ kumulierte mittlere jährliche Radon-Exposition (Exp_{Rneq}) erhält man somit

$$\text{Exp}_{\text{Rneq}} = (50 \cdot 0,3 \cdot 0,8) \text{ Bq} \cdot \text{a} \cdot \text{m}^{-3} \quad (5).$$

Für eine Lebensspanne von 70–80 Jahren errechnet sich eine gleichgewichtsäquivalente Lebenszeitexposition von $800 - 1.000 \text{ Bqam}^{-3}$. Hierbei handelte es sich um eine protrahierte Exposition mit folgenden Eigenschaften

- hohe relative Strahlenempfindlichkeit des Zielorgans (bronchialer und pulmonärer Bereich der Lunge) (10, 30–32),
- hoher Qualitätsfaktor der lokal emittierten Alpha-Strahlung ($Q = 20$) der dort deponierten kurzlebigen Radon-Töchter (10, 14) und
- mögliche synergistische Effekte durch raucherbedingte Belastung des Bronchialepithels.

Unter Anwendung der entsprechenden ICRP-Dosisfaktoren (30) ergibt sich für eine Exposition auf der Basis mittlerer Radon-Aktivitätskonzentration von 50 Bqm^{-3} und eine sich gemäß (5) daraus errechnende gleichgewichtsäquivalente Lebenszeitexposition von 1.000 Bqam^{-3} , eine Äquivalentdosis im Bronchialbereich von 1.300 mSv und im pulmonären Bereich der Lunge von 170 mSv (17, 31), was ausweist, daß es sich hier in seiner Gesamtheit um das Organ mit der höchsten natürlichen Strahlenbelastung handelt.

Die These, daß es sich bei den Opfern der schon von *Georgius Agricola* (1494–1555) 1527–1533 weiland Stadtkrankheit um radon-induzierten Lungenkrebs handelt, ist erst 35 Jahre alt (2, 17, 31). Zieht man zur Bewertung der oben abgeschätzten Lebenszeit-Innenraumexposi-

tion strahlenepidemiologische Daten, überwiegend von Uran-Bergarbeitern heran, zeigt sich beispielsweise beim sog. „ČSFR-Kollektiv“ eine statistische Erhöhung der Lungenkrebsrate oberhalb einer gleichgewichtsäquivalenten Lebensarbeitszeitexposition von 3.500 Bqam^{-3} (17); man stellt fest, daß diese nurmehr den Faktor 4 über der kumulierten mittleren Lebenszeitexposition unserer Bevölkerung in Wohnhäusern liegt.

Wendet man umgekehrt die, zum großen Teil aus der Untersuchung mehrerer derartiger Kollektive von Uran-Bergarbeitern epidemiologisch gewonnenen Risikofaktoren (ICRP (30) und BEIR IV (33); proportionale Expositions-Risiko-Beziehung für Induktion von Lungenkrebs durch dicht ionisierende Strahlung) auf eine mittlere gleichgewichtsäquivalente Radon-Exposition in Häusern von 12 Bqam^{-3} an, so ergibt sich ein rechnerisches Lebenszeitrisiko für Lungenkrebs von 5–10% (16, 17).

Dies hat die nationale Strahlenschutzkommission (SSK) bewogen, auf der Basis entsprechender ICRP-Empfehlungen, mit einer Radon-Aktivitäts-Konzentration von 250 Bqm^{-3} einen oberen Richtwert („Obergrenze des Normalbereichs“) für die Planung neuer Häuser auf der Basis des Fünffachen des als unvermeidbar ansehbaren Normalwerts anzusetzen (34).

Bei bestehenden Häusern werden Sanierungsmaßnahmen empfohlen, wenn der langzeitige Mittelwert der Radon-Aktivitätskonzentration im Wohn- und Aufenthaltsbereich des Hauses oberhalb dieses Richtwertes liegt. Diese Forderungen orientieren sich sowohl „am Grundsatz der Verhältnismäßigkeit“ im Umweltschutz sowie an der Tatsache einer in der Praxis unvermeidbaren „Normalexposition“; Sanierungsmaßnahmen sind zeitlich abgestuft, je nach Grad der Überschreitung des Richtwertes, einzuleiten.

Die Erhöhung der individuellen (Abb. 8), wie passiven Raum-Lüftungs-Rate sowie die Verhinderung von Radon-Invasion durch Eintrittsporten z. B. über die nichtintakte Keller-Bodenplatte entsprechender Häuser stellen, aus strahlenhygienischer Sicht, einfache aber wirkungsvolle erste Maßnahmen zur Expositionsbegrenzung dar, deren Erfolg jedoch in jedem Einzelfall meßtechnisch abzustützen ist.

In Sonderfällen (35) können jedoch weitergehende Sanierungsmaßnahmen (z. B. Einbau von Entlüftungsventilatoren), wie in den USA und Schweden praktiziert, notwendig werden.

Danksagung

Für die freundliche Überlassung von Klimameßstationen sei Herrn Prof. Dr. B. Hörner und Herrn Prof. Dr. R. Schumacher (beide FHM) gedankt, sowie Herrn Dipl.-Chem. V. Genrich (Genitron Instruments GmbH, FFM) für die großzügige apparative Unterstützung.

Literatur

- ¹ United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR): Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation, Report to the General Assembly, New York 1988
- ² Jacobi, W.: Naturwissenschaften 73 (1986) 661–668
- ³ Nero, A. V.: Scientif. Am. 258 (1988) 42–48

- ⁴ *Schmier, H.*: Die Strahlenexposition in Wohnungen durch die Folgeprodukte des Radon und Thoron. In: *Strahlenschutzforschung, BMI-Tagungsbericht, Bonn* (1984) 37–54
- ⁵ *Eiswirth, M., R. J. Schwankner, F. Weigel, V. Wishevsky*: *JCED* 59(1982)608–611
- ⁶ *Weigel, F.*: Radon, *Chemiker-Ztg.* 102 (1978) 287–299
- ⁷ *Keil, R., Th. Franke, F. Schales*: Vorkommen natürlicher Radionuklide im Boden. In: *Aurand, K. et al. (Hrsg.): Die natürliche Strahlenexposition des Menschen.* Stuttgart 1974
- ⁸ *Münnich, K. O., H.-J. Volpp*: Natürliche Variation der Radon-222-Konzentration in der Außenluft, *Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, BMI-Bericht 050 (St. Sch. 728)*, 1984
- ⁹ *Schwankner, R. J., M. Eiswirth*: *MNU* 39 (1986) 139–145
- ¹⁰ *Cramer, R., W. Burkart (Hrsg.): Radon und Strahlenbiologie der Lunge, PSI-Bericht Nr. 22, Villingen* 1989
- ¹¹ *Keller, G., H. Muth*: Natürliche Radioaktivität. In: *Beckert, J., J. Mechel, H. O. Lamprecht (Hrsg.): Gesundes Wohnen.* Düsseldorf 1986
- ¹² *Akerblom, G., P. Andersson, B. Clavensjö*: *Radiat. Prot. Dosim.* 7 (1984) 49–54
- ¹³ *Schwankner, R. J.*: Radiochemie-Praktikum. Universitätsaschenbuch 1068, Paderborn – München – Wien – Zürich 1980
- ¹⁴ *Jacobi, W., H. G. Paretzke, U. H. Ehling*: Strahlenexposition und Strahlenrisiko der Bevölkerung, *GSF S-710, Neuherberg* 1981
- ^{15a,b} *Philipsborn, H. von*: *Geowiss.* 8 (1990) 220–228, 324–338
- ^{15c} *Brandl, M.*: Radon-Meßtechnik und Strahlenexposition durch Radon, Diplomarbeit FHM, München 1990
- ¹⁶ Bundesministerium des Innern (Hrsg.): Radon in Wohnungen und im Freien; Erhebungsmessungen in der Bundesrepublik Deutschland, *BMI-Bericht, Bonn* 1985
- ¹⁷ *Jacobi, W.*: *Phys. Bl.* 45 (1989) 430–434
- ¹⁸ *Schwankner, R. J.*: *Rev. Arch. Sci.* 6 (1986) 285–288
- ¹⁹ *Martin, J.*: *Gesundheits-Ingenieur-Haustechnik-Bauphysik-Umwelttechnik* 106 (1985) 141–143
- ²⁰ Strahlenschutzkommission: Strahlenexposition und mögliches Lungenkrebsrisiko durch Inhalation von Radon-Zerfallsprodukten in Häusern, Empfehlung der Strahlenschutzkommission 1985/86, Veröffentlichung der Strahlenschutzkommission, Bd. 6, Stuttgart · New York 1987
- ²¹ Empfehlung der Kommission zum Schutz der Bevölkerung vor Radonexposition innerhalb von Gebäuden vom 21. Februar 1990, *Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 80 (1990) 26–28*
- ²² *Schwankner, R. J., G. Lieckfeld, D. Lienert*: *Geowiss.* 7 (1989) 215–224
- ²³ *Schwankner, R. J., G. Lieckfeld, A. J. Schöpf et al.*: (im Druck)
- ²⁴ *Gesell, T. F.*: *Health Physics* 45 (1983) 289–302
- ²⁵ *Hans, J. M., R. J. Lyon*: Seasonal Variations of Radon and Radon Decay Product Concentrations in Single Family Homes, EPA, Washington D. C. 1986
- ²⁶ Rat von Sachverständigen für Umweltfragen: Luftverunreinigung in Innenräumen, Drucksache des Deutschen Bundestages 11/613 (1987)
- ²⁷ *Schmier, H., I. Pensko, A. Wicke*: Radon in Wohnräumen. In: *Aurand, K. et al. (Hrsg.): Luftqualität in Innenräumen, Stuttgart* 1982
- ²⁸ *Wegener, J.*: *Gesundheits-Ingenieur-Haustechnik-Bauphysik-Umwelttechnik* 104 (1983) 1–5
- ²⁹ *Tschirf, E.*: Untersuchungen auf dem Gebiet der natürlichen Strahlenbelastung in Österreich, IVth European Congress of IRPA, Salzburg 1986
- ³⁰ ICRP: Lung Cancer Risk from Indoor Exposures to Radon Daughters, *ICRP Pub. 50, Oxford* 1986
- ³¹ *Jacobi, W., K. Eisfeld*: Dose to Tissues and Effective Dose Equivalent by Inhalation of Radon-222, Radon-220 and their Short-Lived Daughters, *GSF S-626, Neuherberg* 1980
- ³² *Jacobi, W.*: *Health Physics* 55/6 (1988) 845–853
- ³³ National Research Council: Health Risks from Radon and other Internally Deposited Alpha-Emitters. Report of the BEIR-IV Committee, Washington D. C. 1988
- ³⁴ Strahlenschutzkommission: Strahlenschutzgrundsätze zur Begrenzung der Strahlenexposition der Bevölkerung durch Radon und seine Zerfallsprodukte, *Bundesanzeiger Nr. 208 vom 30.6.1988, 4759–4760*
- ³⁵ *Rönsch, W.*: Territorialer Strahlenschutz in den Südreionen der ehemaligen DDR (Thüringen und Sachsen). In: *Tagungsbericht für den Strahlenschutz, Seminar am 19. und 20. Oktober 1990 in Berlin, Publikationsreihe Fortschritte im Strahlenschutz FS-90-53-T*

Prof. Dr. rer. nat. R. J. Schwankner
cd. Dipl.-Ing. M. Mundenbruch
cd. Dipl.-Ing. M. Steiner

Fachhochschule München/FB 06 Physikalische Technik/
 Technischer Umweltschutz
 8000 München 2

A. Brummeisl, AOM

Radiometrisches Labor des BRK-KV Traunstein
 8225 Traunreut

Dr. rer. nat. P. Höpfl

Radiometrisches Labor des BRK-KV Starnberg
 8130 Starnberg