

# Inkorporation bei Radonexposition – Radonverteilung im Blut und Deposition der Zerfallsprodukte im Lungenmodell

**Dissertation**  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik  
der Johann Wolfgang Goethe-Universität  
in Frankfurt am Main

von **Annika Hinrichs**  
aus Offenbach am Main

Frankfurt 2024  
(D30)

Vom Fachbereich 13 der

Johann Wolfgang Goethe - Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. Roger Erb

Gutachter: Prof. Dr. Reinhard Dörner  
Prof. Dr. Claudia Fournier

Datum der Disputation: 17.06.24

# Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die Arbeit selbstständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Quellen und Hilfsmittel verfasst habe. Alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus Veröffentlichungen oder aus anderen fremden Quellen entnommen wurden, sind von mir als solche kenntlich gemacht worden. Dasselbe gilt auch für Abbildungen aller Art. Ferner erkläre ich, dass die Arbeit nicht - auch nicht auszugsweise - für eine andere Prüfungs- und Studienleistung verwendet wurde.

Frankfurt, den 17.06.24

# Zusammenfassung

Das radioaktive Edelgas Radon und seine ebenfalls radioaktiven Zerfallsprodukte machen den größten Teil der natürlichen Strahlenbelastung in Deutschland aus. Trotz der Einstufung als krebserregend für Lungenkrebs wird es zur Therapie entzündlicher Krankheiten eingesetzt. Der hauptsächliche Aufnahmemechanismus ist dabei die Inkorporation über die Atmung, wobei Radon auch über die Haut aufgenommen werden kann. Radon wird dabei über das Blut im gesamten Körper verteilt und kann in Gewebe mit hoher Radonlöslichkeit akkumulieren. Die Zerfallsprodukte verbleiben jedoch in der Lunge, zerfallen dort, bevor sie abtransportiert werden können und schädigen das dortige Gewebe.

Die Lungendosis wird laut Simulationen zum größten Teil durch die kleinsten Radon-Zerfallsprodukte ( $< 10$  nm) bestimmt, die besonders effektiv im Respirationstrakt anheften. Die erzeugte Dosis ist dabei aufgrund der inhomogenen Anlagerung der Zerfallsprodukte lokal stark variabel. In Simulationen wurden Bifurkationen als Ort besonders hoher Deposition identifiziert, wobei die experimentelle Datenlage zur Deposition kleinster Radon-Zerfallsprodukte eingeschränkt ist. Aufgrund des Anstiegs der Komplexität von Simulationen oder Experimenten wird in den meisten Betrachtungen nicht der oszillatorische Atemzyklus berücksichtigt, sondern lediglich ein einseitig gerichteter Luftstrom betrachtet. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein experimentelles Modell entwickelt und etabliert, das die Messung der Deposition von Radon-Zerfallsprodukten ermöglicht und zwischen drei Größenfraktionen (Freie Zerfallsprodukte:  $< 10$  nm, Cluster: 20–100 nm, Angelagerte Zerfallsprodukte:  $> 100$  nm) unterscheiden kann. Der Luftfluss durch das Modell bildet sowohl die Inhalation als auch die Exhalation ab. Erste Experimente mit dem neu entwickelten Messaufbau konnten die aus Simulationen bekannte erhöhte Deposition der freien Zerfallsprodukte in einer Bifurkation abbilden. Die Vergrößerung des Bifurkationswinkels von  $70^\circ$  auf  $180^\circ$  zeigte lediglich einen minimalen Anstieg in der Größenordnung des Messfehlers. Der dominierende Prozess der Anlagerung der freien Zerfallsprodukte ist die Brown'sche Molekularbewegung, die unabhängig vom Bifurkationswinkel ist. Dennoch kann ein veränderter Winkel die Luftströmung und entstehende Turbulenzen verändern, wodurch die Deposition beeinflusst werden kann. Dies lässt sich jedoch mit dem hier benutzten Messaufbau nicht auflösen. Entgegen der Beobachtungen in der Literatur führte die Erhöhung der Atemfrequenz von 12 auf 30 Atemzüge pro Minute, in den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten, zu keiner messbaren Veränderung der Deposition. Diese Beobachtung ist auf die Entstehung gegensätzlicher Effekte zurückzuführen. Einerseits führt eine schnellere Luftströmung zu kürzeren Aufenthaltszeiten der freien Zerfallsprodukte im Modell, wodurch die Deposition unwahrscheinlicher wird. Andererseits entstehen vermehrt sekundäre Strömungen und absolut betrachtet werden mehr Partikel durch das Modell gepumpt. Es ist davon auszugehen, dass sich diese Effekte im hier getesteten Bereich aufheben.

Als potentielle Schutzmaßnahme zur Reduktion der Lungendosis konnte im Rahmen dieser Arbeit die Filtereffizienz von Gesichtsmasken (OP-Masken, FFP2 Masken) gegenüber Radon und seinen Zerfallsprodukten bestimmt werden. Während Radon nicht gefiltert wird, wurden die freien Zerfallsprodukte fast vollständig ( $> 98\%$ ) und die Cluster zum größten Teil ( $\approx 80\%$ ) zurückgehalten.

Radon selbst kann im gesamten Organismus verteilt werden und dort in Gewebe akkumulieren. Zur Bestimmung der Dosis wird dabei auf biokinetische Modelle zurückgegriffen. Diese sind von der Qualität ihrer Eingabeparameter abhängig, wobei beispielsweise die Werte zur Verteilung von Radon zwischen Blut und Gewebe auf experimentell gewonnenen Löslichkeitswerten aus Mäusen und Ratten beruhen. Unbekannte Werte werden von der Internationalen Strahlenschutzkommission basierend auf der Gewebezusammensetzung als gewichteter Mittelwert berechnet. In dieser Arbeit wurde die Löslichkeit in humanen Blutproben und wässrigen Lösungen verschiedener Konzentrationen der Blutproteine Hämoglobin und Albumin bestimmt. Es löste sich mehr Radon in Plasma als in Erythrozytenkonzentrat und Vollblut. Die Protein-Lösungen zeigten keine Konzentrationsabhängigkeit der Löslichkeit, sondern lediglich in hitzedenaturiertem Hämoglobin wurde eine niedrigere Löslichkeit gemessen. Basierend auf diesen Beobachtungen, sollte die These überprüft werden, ob sich die Löslichkeit einer Mischung als gewichteter Mittelwert der einzelnen Löslichkeiten berechnen lässt. Daher wurden diese in einer Mischung aus zwei Flüssigkeiten (1-Pentanol, Ölsäure) bestimmt. Die experimentell bestimmte Löslichkeit war dabei fast doppelt so groß wie der berechnete Wert. Dieser Unterschied kann dadurch zustande kommen, dass bei einer Berechnung basierend auf der Zusammensetzung die Wechselwirkungen zwischen den Lösungsmitteln vernachlässigt werden. Dies verdeutlicht die Notwendigkeit experimenteller Daten zur Verteilung und Lösung von Radon in verschiedenem Gewebe.

# Abstract

The radioactive noble gas radon together with its progeny are responsible for the largest amount of the natural radiation exposure in Germany. Despite being classified as carcinogenic for lung cancer, it is used for treating inflammatory diseases. The main route of intake is incorporation during inhalation, where radon is distributed within the whole body via blood flow and accumulates in tissue with high radon solubility. Additionally, the uptake through the skin is possible. In contrast, radon progeny deposit in the respiratory tract and decay before clearance can occur damaging the tissue.

Based on simulations the smallest fraction of progeny ( $< 10$  nm) are the main contributor to lung dose due to their effective deposition. Because of the inhomogeneous deposition pattern the resulting dose is variable. Simulation determined bifurcations as hotspot regions of high deposition while data from experimental studies considering the smallest progeny are rare. Due to increasing complexity of simulations and experiments most publications focus on an unidirectional airflow neglecting the oscillatory properties of breathing. In the presented work a new experimental setup was designed and established including airflow patterns representing inspiration and expiration and enabling the measurement of progeny deposition differentiating between three size fractions (Unattached progeny:  $< 10$  nm, Cluster: 20–100 nm, Attached progeny:  $> 100$  nm). First experiments were able to reproduce the increased deposition of unattached progeny in bifurcations known from simulations. Enlargement of the bifurcation angle from  $70^\circ$  to  $180^\circ$  only revealed a slightly higher deposition in the same order of magnitude as the measurement error. The dominating deposition mechanism acting on unattached progeny is Brownian motion, which is independent of the bifurcation angle. However, alterations of the angle might influence airflow patterns and occurring turbulences, which then effect deposition but can't be resolved with the used measurement setup. In contrast to observations in literature, increasing the breathing frequency from 12 to 30 breaths per minute showed no effect, which might be due to opposing effects. On the one hand, higher airflow rates decrease the residence time of unattached progeny within the model making deposition less likely. On the other hand, more pronounced secondary air currents develop and considering absolute numbers more particles travel through the model. In the tested range of breathing frequency it can be assumed that these effects cancel each other out.

As a potential safety measurement to decrease the lung dose the filtration efficiency of face masks (Surgical mask, FFP2 mask) against radon and its progeny was tested. While radon isn't reduced, unattached progeny are nearly completely retained within the mask ( $> 98\%$ ) and also the largest proportion of the clusters ( $\approx 80\%$ ).

Radon itself can be distributed throughout the whole organism and accumulate within different tissues. Dose calculation is based on biokinetic models. They're dependent on input parameters like the distribution of radon within air and blood, which is based on experimental data observed in mice and rats. Solubility in tissues for which no data is available are calculated by the International Commission on Radiological Protection (ICRP) as a weighted average based on tissue composition. In the presented work radon solubility was determined in human blood samples and aqueous solutions of different concentrations of hemoglobin and albumin which are the most frequent proteins in human blood. More radon was dissolved in plasma compared to

erythrocytes and whole blood. The solubility in protein dissolutions didn't show any concentration dependence and only revealed a decreased solubility if hemoglobin was heat denatured. Based on these observations, the hypothesis of calculating the solubility of a mixture as mass-weighted average of the single values should be tested. Therefore, solubility was measured within a mixture of two liquids (1-pentanol, oleic acid). Experimentally determined solubility was nearly twice as high as calculated solubility, not confirming the hypothesis. This difference might be caused by neglecting the interaction between the two solvents when using the mass-weighted average for calculation. This illustrates the necessity of experimental data of radon solubility within different tissues.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2. Einleitung</b>	<b>2</b>
2.1. Radioaktivität . . . . .	2
2.1.1. Zerfallsgesetz . . . . .	2
2.1.2. Zerfallsarten . . . . .	2
2.1.3. Wechselwirkung mit Materie . . . . .	3
2.1.4. Biologische Wirkung ionisierender Strahlung . . . . .	7
2.2. Radon . . . . .	10
2.2.1. Entstehung und Zerfallsreihe . . . . .	10
2.2.2. Biokinetische Modelle . . . . .	12
2.2.3. Therapie . . . . .	14
2.3. Radon-Zerfallsprodukte . . . . .	15
2.3.1. Größenverteilung . . . . .	15
2.3.2. Depositionsmechanismen . . . . .	17
2.4. Kenngrößen der Radonexposition . . . . .	19
2.5. Inkorporation . . . . .	20
2.5.1. Inkorporation von Radongas . . . . .	23
2.5.2. Inkorporation der Zerfallsprodukte . . . . .	24
<b>3. Material und Methoden</b>	<b>28</b>
3.1. Expositionssystem Radonkammer . . . . .	28
3.2. Messung von Radon und alpha-strahlenden Zerfallsprodukten . . . . .	30
3.2.1. Radonmessung . . . . .	30
3.2.2. Messung der Radon-Zerfallsprodukte . . . . .	31
3.2.3. Darstellung der Daten . . . . .	32
3.3. Charakterisierung der Radonkammer . . . . .	33
3.4. Aerosolgenerator . . . . .	34
3.5. Lungenmodell . . . . .	35
3.6. Filterung von Radon-Zerfallsprodukten durch Gesichtsmasken . . . . .	38
3.7. Löslichkeit . . . . .	39
3.7.1. Probenauswahl und -vorbereitung . . . . .	39
3.7.2. Exposition . . . . .	40
3.7.3. Gammaspektroskopie . . . . .	41
3.7.4. Extrapolation der Daten und Berechnung der Löslichkeit . . . . .	44
<b>4. Ergebnisse</b>	<b>46</b>
4.1. Charakterisierung der Radonkammer . . . . .	46
4.1.1. Reproduzierbarkeit der Daten . . . . .	46
4.1.2. Radonaktivitätskonzentration . . . . .	48
4.1.3. Ventilation . . . . .	49

4.1.4.	Räumliche Verteilung . . . . .	51
4.1.5.	Relative Luftfeuchtigkeit . . . . .	53
4.1.6.	Temperatur . . . . .	55
4.1.7.	Zusammenfassung Charakterisierung Radonkammer . . . . .	57
4.2.	Aerosolgenerator . . . . .	57
4.3.	Depositionsmessungen im Lungenmodell . . . . .	59
4.3.1.	Deposition in Bifurkationen im Vergleich zu einem Hohlzylinder . . . . .	60
4.3.2.	Bifurkationswinkel . . . . .	61
4.3.3.	Atemfrequenz . . . . .	62
4.4.	Filterung von Radon-Zerfallsprodukten durch Masken . . . . .	63
4.5.	Löslichkeit von Radon in Blut und Blutkomponenten . . . . .	64
<b>5.</b>	<b>Diskussion</b>	<b>69</b>
5.1.	Charakterisierung der Radonkammer . . . . .	69
5.1.1.	Reproduzierbarkeit . . . . .	70
5.1.2.	Radonaktivitätskonzentration . . . . .	71
5.1.3.	Ventilation . . . . .	71
5.1.4.	Räumliche Verteilung . . . . .	72
5.1.5.	Relative Luftfeuchtigkeit . . . . .	74
5.1.6.	Temperatur . . . . .	75
5.1.7.	Aerosolgenerator . . . . .	76
5.2.	Depositionsmessungen im Lungenmodell . . . . .	78
5.2.1.	Deposition in Bifurkationen im Vergleich zu einem Hohlzylinder . . . . .	78
5.2.2.	Bifurkationswinkel . . . . .	80
5.2.3.	Atemfrequenz . . . . .	81
5.3.	Filterung von Radon-Zerfallsprodukten durch Masken . . . . .	82
5.4.	Löslichkeit . . . . .	84
<b>6.</b>	<b>Ausblick</b>	<b>88</b>
<b>A.</b>	<b>Anhang</b>	<b>ii</b>
A.1.	Material und Methoden . . . . .	ii
A.1.1.	Vergleich humane und bovine Proteine . . . . .	ii
A.1.2.	Lungenmodell . . . . .	iii
A.2.	Ergebnisse . . . . .	iv
A.2.1.	Statistik . . . . .	iv
A.2.2.	Charakterisierung Radonkammer . . . . .	iv
A.3.	Aerosolgenerator . . . . .	vii
A.4.	Geräte und Software . . . . .	vii
A.5.	Material Beatmungsgerät . . . . .	viii
A.6.	Proben Löslichkeit . . . . .	viii

# Abbildungsverzeichnis

2.1. Wechselwirkung von Gammaquanten mit Materie . . . . .	5
2.2. Dominierende Wechselwirkung von Gammaquanten . . . . .	6
2.3. Radonaktivitätskonzentration in Wohnungen . . . . .	10
2.4. Ausschnitt Uran-Radium Zerfallsreihe . . . . .	11
2.5. Relative Aktivitäten $^{222}\text{Rn}$ , $^{218}\text{Po}$ , $^{214}\text{Pb}$ , $^{214}\text{Bi}$ . . . . .	12
2.6. Darstellung biokinetisches Modell . . . . .	13
2.7. Effektive Dosis in Abhängigkeit der Partikelgröße . . . . .	18
2.8. Einteilung des Respirationstraktes in verschiedene Bereiche . . . . .	22
2.9. Zusammensetzung des humanen Blutes . . . . .	24
2.10. Größenabhängige Partikeldeposition im Respirationstrakt . . . . .	25
2.11. Simulation der Partikeldeposition in einer Bifurkation . . . . .	26
3.1. Expositionssystem Radonkammer . . . . .	28
3.2. Anstieg der theoretischen und experimentell bestimmten Radonaktivitätskonzentration über die Zeit . . . . .	29
3.3. Schemazeichnung Messkammer zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration . . . . .	31
3.4. Schemazeichnung Detektorkopf zur größenabhängigen Bestimmung der Radon-Zerfallsprodukte . . . . .	31
3.5. Charakteristischer Verlauf Radonaktivitätskonzentration, verschiedener Größenfraktionen und F-Faktor . . . . .	32
3.6. Beatmungsgerät . . . . .	35
3.7. Schemazeichnung Trachea-Modell . . . . .	36
3.8. Schemazeichnung Bifurkationsmodelle . . . . .	37
3.9. Schemazeichnung Position Detektorkopf am Modell . . . . .	37
3.10. Aufbau zur Bestimmung der Filtereffizienz von Gesichtsmasken . . . . .	38
3.11. Schemazeichnung Gefäß Löslichkeit . . . . .	41
3.12. Gammasktrum . . . . .	42
3.13. Effizienzkalibrierkurve Gammadetektor . . . . .	43
3.14. Grafische Bestimmung der Anfangsaktivität . . . . .	44
4.1. EEC der Radon-Zerfallsprodukte bei vergleichbaren Expositionsbedingungen . . . . .	47
4.2. Linearer Zusammenhang der freien Zerfallsprodukte und Cluster mit Radonaktivitätskonzentration . . . . .	48
4.3. R_EEC angelagerte Zerfallsprodukte bei Variation der Ventilation . . . . .	49
4.4. R_EEC freie Zerfallsprodukte bei Variation der Ventilation . . . . .	50
4.5. Position Detektorkopf zur Bestimmung der räumlichen Verteilung der Zerfallsprodukte . . . . .	52
4.6. R_EEC der freien Zerfallsprodukte und Cluster bei verschiedenen Positionen des Detektorkopfes . . . . .	53
4.7. R_EEC der freien Zerfallsprodukte und Cluster bei unterschiedlicher relativer Luftfeuchtigkeit . . . . .	54

4.8.	Gemessene und berechnete Radonaktivitätskonzentration bei unterschiedlicher relativer Luftfeuchtigkeit . . . . .	55
4.9.	Gemessene und berechnet Radonaktivitätskonzentration bei unterschiedlichen Temperaturen . . . . .	56
4.10.	EEC der freien Zerfallsprodukte und Cluster bei unterschiedlichen Temperaturen	57
4.11.	R_EEC der freien Zerfallsprodukte und Cluster ohne und mit Nutzung des Aerosolgenerators . . . . .	58
4.12.	R_EEC der angelagerten Zerfallsprodukte bei Nutzung des Aerosolgenerators . .	59
4.13.	R_EEC der freien Zerfallsprodukte in Luftröhren-Modell und Bifurkationsmodell	60
4.14.	R_EEC der freien Zerfallsprodukte bei unterschiedlichen Bifurkationswinkeln . .	61
4.15.	R_EEC der freien Zerfallsprodukte bei unterschiedlichen Beatmungsfrequenzen .	62
4.16.	Messung R_EEC der freien Zerfallsprodukte und Cluster mit und ohne Maske und Filtereffizienz . . . . .	64
4.17.	Löslichkeit in Vollblut, Erythrozyten und Plasma . . . . .	65
4.18.	Löslichkeit in Hämoglobin- und Albumin-Lösungen verschiedener Konzentrationen	66
4.19.	Löslichkeit in Ölsäure, 1-Pentanol und Mischung . . . . .	67
5.1.	Luftstrom in der Radonkammer durch das Messgerät . . . . .	73
5.2.	Diffusionsgeschwindigkeit in Abhängigkeit der Partikelgröße . . . . .	83
A.1.	Vergleich 3D Struktur humanes und bovines Hämoglobin . . . . .	ii
A.2.	Vergleich 3D Struktur humanes und bovines Albumin . . . . .	iii
A.3.	Geometrie der Bifurkationsmodelle ( $\varphi = 180^\circ$ ) . . . . .	iii
A.4.	R_EEC der Cluster bei Variation der Ventilation . . . . .	iv
A.5.	Radonaktivitätskonzentration unterschiedliche Detektorkopfpositionen . . . . .	vi
A.6.	R_EEC freie Zerfallsprodukte und Cluster bei unterschiedlicher relativer Luftfeuchtigkeit . . . . .	vi

# Tabellenverzeichnis

2.1. Strahlungswichtungsfaktoren . . . . .	9
2.2. Gewebewichtungsfaktoren . . . . .	9
2.3. Rückstoß-Parameter . . . . .	17
2.4. Potentielle Alphaenergie . . . . .	19
2.5. Atemparameter der ICRP . . . . .	23
3.1. Zusammensetzung Blutproben . . . . .	40
3.2. Zerfallsenergien und -wahrscheinlichkeiten $^{214}\text{Pb}$ und $^{214}\text{Bi}$ . . . . .	43
4.1. Vergleich der EEC der Größenfraktionen bei gleichen Expositionsbedingungen . .	47
4.2. Fitparameter des begrenzten Wachstums der R_EEC der freien Zerfallsprodukte bei unterschiedlicher Ventilation . . . . .	50
4.3. Vergleich R_EEC der freien Zerfallsprodukte bei unterschiedlicher Ventilation . .	51
4.4. Expositionsbedingungen Experimente Temperatureinfluss . . . . .	56
4.5. R_EEC und Deposition freie Zerfallsprodukte im Luftröhren- und Bifurkationsmodell . . . . .	60
4.6. R_EEC der freien Zerfallsprodukte bei unterschiedlichen Bifurkationswinkeln . .	61
4.7. R_EEC der freien Zerfallsprodukte bei unterschiedlichen Atemfrequenzen . . . .	62
4.8. Löslichkeit von Radon in Vollblut, Erythrozyten und Plasma . . . . .	65
4.9. Löslichkeit in Hämoglobin- und Albumin-Lösungen verschiedener Konzentrationen	66
4.10. Löslichkeit in Ölsäure, 1-Pentanol und Mischung . . . . .	67
A.1. Vergleich der strukturellen Ähnlichkeiten von Proteinen . . . . .	ii
A.2. Fitparameter der R_EEC der Cluster bei unterschiedlicher Ventilation . . . . .	v
A.3. Vergleich R_EEC der Cluster bei unterschiedlicher Ventilation . . . . .	v
A.4. Einstellungen des Aerosolgenerators . . . . .	vii

# Abkürzungsverzeichnis

$\epsilon_{Det}$ Detektoreffizienz	<b>HRTM</b> Human Respiratory Tract Model
$\epsilon_i$ potentielle Alphaenergie	<b>I</b> Impaktion
$\lambda$ Zerfallskonstante	<b>ICRP</b> International Commission on Radiological Protection
$\nu_{Partikel}$ Sinkgeschwindigkeit	<b>k<sub>B</sub></b> Boltzmann-Konstante
$\nu_{Air}$ Strömungsgeschwindigkeit	<b>LNT</b> linear-non-threshold
$\omega_R$ Strahlungswichtungsfaktor	<b>m<sub>Probe</sub></b> Probenmasse
$\omega_T$ Gewebewichtungsfaktor	<b>m<sub>T</sub></b> Gewebemasse
<b>A</b> Aktivität	<b>N</b> Teilchenzahl
<b>A<sub>Netto</sub></b> Nettopeakfläche	<b>P</b> Verteilungskoeffizient
<b>BPM</b> Atemzug pro Minute	<b>p<sub><math>\lambda</math></sub></b> Zerfallswahrscheinlichkeit
<b>c(Rn)</b> Radonaktivitätskonzentration	<b>PAEK</b> potentielle Alphaenergiekonzentration
<b>C<sub>c</sub></b> Cunningham-Korrektur	<b>PLA</b> Polylactic Acid
<b>D</b> Diffusionskonstante	<b>Q</b> Volumenstrom
<b>D<sub>T</sub></b> Dosis	<b>Q<sub>Dil</sub></b> Verdünnungsluft
<b>DNS</b> Desoxyribonukleinsäure	<b>Q<sub>Träger</sub></b> Träger-Luft
<b>DRK</b> Deutsches Rotes Kreuz	<b>Q<sub>WO<sub>x</sub></sub></b> Wolfram-Luft
<b>DSB</b> Double-strand break	<b>Re</b> Reynolds-Zahl
<b>E<sub>Ionisation</sub></b> Ionisationspotential	<b>ROS</b> Reactive oxygen species
<b>E<sub>Photon</sub></b> Photonenenergie	<b>RR</b> Atemfrequenz
<b>EEC</b> Equilibrium Equivalent Concentration	<b>S</b> Löslichkeit
<b>F<sub>Auftrieb</sub></b> Auftriebskraft	<b>SSB</b> Single-strand break
<b>f<sub>frei</sub></b> Anteil der freien Zerfallsprodukte	<b>t</b> Zeit
<b>F<sub>Gewicht</sub></b> Gewichtskraft	<b>t<sub><math>\frac{1}{2}</math></sub></b> Halbwertszeit
<b>F<sub>i</sub></b> Blutfluss	<b>t<sub>meas</sub></b> Messzeit
<b>f<sub>Koin</sub></b> Koinzidenzkorrektur	<b>TV</b> Atemzugvolumen
<b>F<sub>Reibung</sub></b> Reibung	<b>VE</b> Vollentsalzt
<b>f<sub>Zerfall</sub></b> Zerfallskorrektur	

# 1. Motivation

Der Mensch ist in seinem Leben mit unterschiedlichen Arten von Strahlung konfrontiert, die sowohl natürlichen als auch künstlichen Ursprung haben kann. Dazu zählt auch die ionisierende Strahlung, die dazu in der Lage ist, den Organismus oder Teile davon zu schädigen. Dies wird teilweise gezielt ausgenutzt, um therapeutische Effekte zu erzielen.

Eine natürlich vorkommende Quelle ionisierender Strahlung durch radioaktiven Zerfall ist das Edelgas Radon, das in der Uran-Radium-Reihe entsteht und für einen Großteil der natürlichen Strahlenbelastung verantwortlich ist [1]. Es wird zwar zusammen mit seinen radioaktiven Zerfallsprodukten als krebserregend für Lungenkrebs eingestuft [2], dennoch wird es auch zur Therapie entzündlicher Krankheiten wie rheumatoider Arthritis genutzt [3].

Während dieser Therapie können Radon und seine Zerfallsprodukte über die Atmung inkorporiert werden. Das Edelgas selbst wird dabei zum größten Teil wieder ausgeatmet [4], wobei sich ein geringer Teil im Blut löst und dann über den Blutfluss im gesamten Körper verteilt wird. Die Löslichkeit von Radon in Blut bestimmt hierbei, wie viel Radon im Körper verteilt werden kann. Es ist allerdings unklar, ob bestimmte Bestandteile des Blutes die Löslichkeit in unterschiedlichem Maße beeinflussen. Durch die Verteilung im Körper kann es zur Akkumulation von Radon in Gewebe kommen [5–7]. Eine der wichtigen Kenngrößen zur Bestimmung dieser Ansammlung ist die Löslichkeit, wobei nur begrenzte experimentelle Daten vorliegen, die auf Tierversuchen in Ratten oder Mäusen beruhen [8, 9]. Um dennoch mit Hilfe von Modellen die Dosis nach Inkorporation von Radon berechnen zu können, werden unbekannte Löslichkeiten basierend auf der Zusammensetzung des Gewebes berechnet [10].

Die Radon-Zerfallsprodukte hingegen verbleiben im Respirationstrakt und haften abhängig von ihrer Größe in unterschiedlichen Bereichen an [11]. Anschließend zerfallen sie dort, bevor sie abtransportiert werden können und schädigen somit die Lunge. Sie tragen zum größten Teil der Dosis nach Inkorporation von Radon und seinen Zerfallsprodukten bei. Die effektive Dosis, die die Strahlungs- und Gewebeart berücksichtigt, ist für die Lunge am größten [10]. Insbesondere die kleinsten Radon-Zerfallsprodukte ( $< 10$  nm) sind hier von Relevanz, da sie fast vollständig im Respirationstrakt zurückbleiben [11].

In Simulationen zur Bestimmung des Ortes der Deposition der Zerfallsprodukte wurde festgestellt, dass diese nicht gleichmäßig anlagern, sondern Bereiche erhöhter Deposition entstehen [12, 13]. Diese sogenannten Hotspots sorgen dann lokal für eine deutlich erhöhte Dosis und detaillierte Kenntnisse dieser Hotspots sind essentiell für die Risikobewertung der Exposition.

Im Rahmen dieser Arbeit sollten Kenntnisse zur Löslichkeit von Radon in Blut und dessen Komponenten gewonnen werden, um potentielle Einflussfaktoren identifizieren zu können, die zu einer erhöhten oder reduzierten Löslichkeit beitragen. Außerdem war es das Ziel, die Hypothese der International Commission on Radiological Protection (ICRP) zur Berechnung der Löslichkeit basierend auf der Zusammensetzung von Gewebe zu überprüfen.

Zusätzlich sollte ein neues experimentelles Modell zur Bestimmung der Deposition in der Lunge entwickelt werden, das die Messung der kleinsten Zerfallsprodukte ( $< 10$  nm) ermöglicht. Nach Etablierung war es ein weiteres Ziel, darin erste Messungen durchzuführen, um die Abhängigkeit der Deposition vom Bifurkationswinkel und von der Atemfrequenz zu bestimmen.

## 2. Einleitung

Im folgenden Kapitel werden die grundlegenden Mechanismen des radioaktiven Zerfalls betrachtet, die Entstehung und Eigenschaften von Radon und seinen Zerfallsprodukten dargestellt und deren wichtigsten Kenngrößen im Strahlenschutz vorgestellt. Zusätzlich wird auf die für diese Arbeit relevanten Merkmale des humanen Respirationstraktes und auch des humanen Blutes eingegangen.

### 2.1. Radioaktivität

Radioaktivität beschreibt die spontane Umwandlung eines instabilen Atomkerns durch Aussendung ionisierender Strahlung, wobei sich dieser entweder in einen anderen Kern umwandeln oder seinen energetischen Zustand verändern kann. Die entstehende Strahlung kann aus Teilchen bestehen oder es kann sich auch um elektromagnetische Strahlung handeln.

#### 2.1.1. Zerfallsgesetz

Die Umwandlungsprozesse des radioaktiven Zerfalls sind vielfältig, wobei sie immer in einer Abnahme der ursprünglich vorhandenen Teilchenzahl ( $N$ ) resultieren. Dieser Prozess ist von der Zeit ( $t$ ) und der jeweiligen Zerfallskonstanten ( $\lambda$ ) des Isotops abhängig und wird mit Hilfe der Aktivität ( $A$ ) angegeben:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda \cdot N = -A(t) \quad (2.1)$$

Integration der Gleichung liefert:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad (2.2)$$

wobei  $N_0$  der Teilchenzahl zum Zeitpunkt  $t = 0$  entspricht ( $N_0 = N(t=0)$ ). Einsetzen von Formel 2.2 in Formel 2.1 und die Anfangsaktivität  $A_0$  ( $A_0 = A(t=0) = \lambda \cdot N_0$ ) ermöglichen die Berechnung der Aktivität abhängig von der Zeit:

$$A(t) = \lambda \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad (2.3)$$

Aus Gleichung 2.3 lässt sich die physikalische Halbwertszeit ( $t_{\frac{1}{2}}$ ) eines Nuklids berechnen, die angibt, nach welcher Zeit die Hälfte des ursprünglich vorhandenen Isotops zerfallen ist:

$$t_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (2.4)$$

#### 2.1.2. Zerfallsarten

Die Umwandlung instabiler Mutterkerne in Tochterkerne kann auf verschiedene Arten ablaufen und Strahlung mit unterschiedlichen Eigenschaften emittieren. Dabei kann es zur Veränderung der Massenzahl und Ordnungszahl ( $Z$ ) kommen. Im Folgenden werden die für diese Arbeit relevanten Zerfallsarten (Alpha-, Beta- und Gammazerfall) detaillierter erklärt. Weitere Arten

des Zerfalls wie beispielsweise die Spontanspaltung, die bei sehr schweren Atomkernen auftritt ( $Z > 90$ ), werden nicht genauer betrachtet.

Der Alphazerfall entspricht der Emission eines zweifach-positiv geladenen Helium-Kerns aus dem Mutterkern bei gleichzeitiger Entstehung eines Tochterkerns. Die Energiedifferenz der Bindungsenergien zwischen Mutter- und Tochterkern wird dabei in die kinetische Energie des Alphateilchens umgewandelt und führt somit zu monoenergetischer Strahlung. Da die Energiedifferenz und somit die Energie der Strahlung für ein Nuklid konstant ist, kann basierend auf der Energie des Alphateilchens auf das emittierende Mutternuklid geschlossen werden.

Der Betazerfall erzeugt ebenfalls Teilchenstrahlung und ist durch die Emission von Elektronen oder Positronen gekennzeichnet und wird in  $\beta^-$ - und  $\beta^+$ -Zerfall unterteilt. Welcher Betazerfall stattfindet, ist abhängig von der Anzahl der Neutronen und Protonen des Nuklids.

Nuklide mit einem Überschuss an Neutronen durchlaufen  $\beta^-$ -Zerfall, wobei sich unter Aussendung eines Elektrons und eines Antineutrinos ein Neutron in ein Proton umwandelt. Im Gegensatz dazu zerfallen Nuklide mit einem Protonenüberschuss durch  $\beta^+$ -Zerfall. Hierbei wird ein Proton in ein Neutron unter Emission eines Positrons und eines Neutrinos umgewandelt.

Das entstehende Spektrum des  $\beta$ -Zerfalls ist kontinuierlich, da die freiwerdende Zerfallsenergie zwischen den drei Teilchen (Tochterkern, Elektron/Positron, Antineutrino/Neutrino) stochastisch aufgeteilt wird. Die Energie- und Impulserhaltung ist hierbei erfüllt, die Energieaufteilung pro Teilchen ist jedoch variabel.

Nach einem durchlaufenen radioaktiven Zerfall kann ein Atomkern in einem energetisch angeregten Zustand zurückbleiben. Der Übergang dieses Kerns in einen energetisch niedrigeren Zustand kann dann unter Aussendung elektromagnetischer Strahlung, sogenannter Gammaquanten, ablaufen. Die Energiedifferenz der beiden Zustände bestimmt dabei die Photonenenergie.

Im Gegensatz zu den anderen beiden Zerfallsarten handelt es sich bei der Gammastrahlung nicht um Teilchenstrahlung. Außerdem verändert sich dabei weder die Neutronen- noch die Protonenanzahl.

### 2.1.3. Wechselwirkung mit Materie

Die Eigenschaften der Strahlung sind ausschlaggebend für ihre Wechselwirkung mit Materie. Insbesondere der Teilchencharakter von Strahlung (Bsp.: Alpha- & Betastrahlung) im Vergleich zur elektromagnetischen Photonen-Strahlung (Bsp.: Gammastrahlung, UV-Strahlung) ist entscheidend. Sie werden daher im Folgenden separat betrachtet.

#### Teilchenstrahlung

Teilchenstrahlung fasst die Arten von Strahlung zusammen, die durch die Emission bewegter Teilchen mit einer Ruhemasse größer als null charakterisiert sind. Diese können ebenfalls geladen sein, wie dies bei Alpha- und Betastrahlung der Fall ist und die im Rahmen dieser Arbeit von Interesse sind. Die jeweiligen Wechselwirkungen werden daher hinsichtlich der Eigenschaften beider Strahlungsarten wie beispielsweise deren Ladungszustand und Energiebereich eingeordnet. Eintreffende Teilchen der Strahlung werden allgemein als Projektile bezeichnet, die mit den Absorberatomen wechselwirken und dadurch kontinuierlich abgebremst werden. Dies führt zu einer maximalen Reichweite der jeweiligen Teilchenstrahlung in einem spezifischen Absorber.

Die Strahlung kann einerseits mit den Elektronen oder andererseits mit den Atomkernen des Absorbermaterials wechselwirken. Dies hängt unter anderem von der Art der Teilchenstrahlung, der Energie der Teilchen und dem Absorbermaterial ab [14]. Es kann bei den Wechselwirkungen zwischen Stoßbremsung und Strahlungsbremsung unterschieden werden, wobei die Stoßbremsung zur Anregung oder auch zur Ionisation des Stoßpartners führt.

Bei geringen Eintrittsenergien der Projektile dominiert die sogenannte nukleare Stoßbremsung, wobei emittierte Teilchen elastisch gestreut werden und nur einen geringen Anteil ihrer Energie verlieren. Die hauptsächliche Wechselwirkung ist jedoch die elektronische Stoßbremsung, die sich wiederum aus weichen und harten Stößen zusammensetzt. Weiche Stöße beschreiben die elastische und inelastische Streuung des Projektils an den Hüllenelektronen des Absorbers durch Coulomb-Wechselwirkungen, wobei die elastische Streuung analog zur nuklearen Stoßbremsung nur zu einem minimalen Energieverlust führt und daher hier vernachlässigt werden kann. Bei der inelastischen Streuung kommt es zur Anregung oder Ionisation von Hüllenelektronen und einer damit verbundenen Freisetzung niederenergetischer Sekundärelektronen. Dabei verliert das Projektil einen Teil seiner Energie und ändert seine Richtung. Aufgrund der deutlich größeren Masse von Alphateilchen im Vergleich zu den Hüllenelektronen bleibt ihre Bewegungsrichtung quasi konstant. Im Gegensatz dazu sind harte Stöße direkte Stöße mit den Absorberelektronen, die zu einem höheren Energieverlust des Projektils führen. Die dabei entstehenden Elektronen werden als  $\delta$ -Elektronen bezeichnet und haben deutlich höhere Energien und Streuwinkel als die bei weichen Stößen freigesetzten Elektronen. Die  $\delta$ -Elektronen selbst verlieren ihre Energie wiederum durch weiche Stöße mit den Absorberatomen. Die mathematische Beschreibung für den Energieverlust pro Wegstrecke ( $\frac{dE}{dx}$ ) von Teilchen durch elektronische Stoßbremsung kann durch die Bethe-Bloch-Gleichung beschrieben werden [15, 16]:

$$\frac{dE}{dx} = -\frac{Z_T^2 e^4 n_e}{4\pi \cdot \epsilon_0^2 \nu^2 m_e} \left[ \ln \frac{2m_e \nu^2}{\langle E_b \rangle} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right] \quad (2.5)$$

Hierbei entspricht:

- $Z_T \cdot e$  der Teilchenladung mit der Elementarladung  $e$
- $n_e$  der Elektronendichte des Absorbers
- $\nu$  der Teilchengeschwindigkeit mit  $\beta = \frac{\nu}{c}$  mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$
- $\epsilon_0$  der Dielektrizitätskonstanten
- $m_e$  der Masse des Elektrons
- $\langle E_b \rangle$  der mittleren Bindungsenergie der Elektronen

Während bei Alphateilchen die Masse deutlich größer ist als die des Hüllenelektrons, ist dies für die Betastrahlung nicht der Fall. Hierbei sind das einfallende Elektron der Betastrahlung und das Hüllenelektron ununterscheidbar, deswegen muss die Ablenkung des einfallenden Projektils berücksichtigt werden. Um die stärkere Streuung der Betateilchen zu berücksichtigen, ist es notwendig, die Gleichung zu modifizieren [17, 18]:

$$\frac{dE}{dx} = -\frac{e^4 n_e}{8\pi \cdot \epsilon_0^2 \nu^2 m_e} \left[ \ln \frac{2m_e \nu^2 E_e}{2\langle E_b \rangle^2 (1 - \beta^2)} + (1 - \beta^2) - \frac{2\gamma - 1}{\gamma^2} \ln(2) + \frac{1}{8} \left( \frac{\gamma - 1}{\gamma} \right)^2 \right] \quad (2.6)$$

Hierbei entspricht  $E_e = m_e c^2 (\gamma - 1)$  der relativistischen kinetischen Energie der Elektronen mit  $\gamma = \sqrt{1 - \beta^2}$  [18].

Zusätzlich ist die Erzeugung von Bremsstrahlung für Betastrahlung relevant. Hierbei werden die Projektile durch Coulomb-Wechselwirkungen abgelenkt und verlieren einen Teil ihrer kinetischen Energie. Dies führt zur Emission von Photonenstrahlung, die aufgrund ihrer Entstehung als Bremsstrahlung bezeichnet wird.

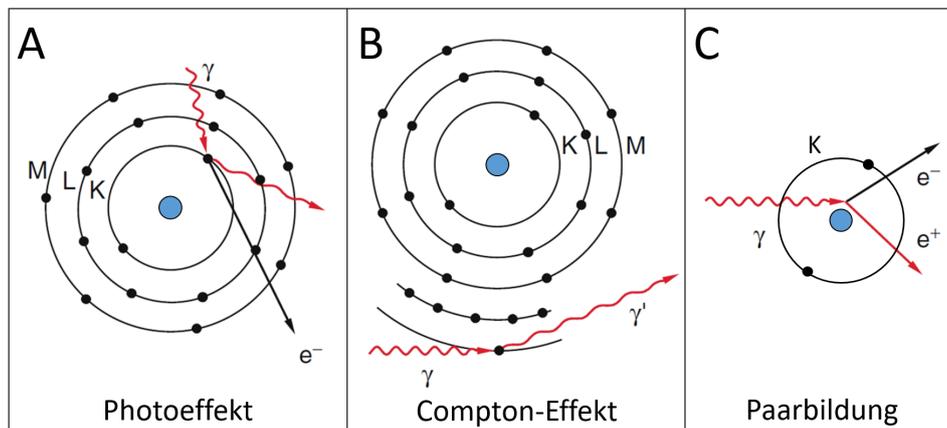
Zusätzlich zu den beschriebenen Wechselwirkungen können Kernreaktionen zwischen schweren Teilchen und den Absorberatomen stattfinden. Diese sind jedoch aufgrund ihrer Seltenheit bei den betrachteten Energien vernachlässigbar [19]. Weitere Arten der Wechselwirkung wie beispielsweise Čerenkov-Strahlung tragen bei den durchgeführten Experimenten nicht zum Energieverlust der Strahlung bei und werden daher nicht genauer erläutert.

### Photonen-Strahlung

Im Gegensatz zur Teilchenstrahlung handelt es sich bei Photonen um masselose elektromagnetische Wellenpakete, die zeitlich und räumlich begrenzt sind [19]. Treffen Photonen, zu denen auch Gammaquanten zählen, auf Materie, treten folgende Wechselwirkungen auf [16]:

- Absorption in der Elektronenhülle  $\Rightarrow$  Photoeffekt
- Inelastische Streuung  $\Rightarrow$  Compton-Effekt
- Wechselwirkung mit Coulomb-Feld  $\Rightarrow$  Paarbildung
- Elastische Streuung  $\Rightarrow$  Bsp.: Rayleigh- und Thomson-Streuung
- Absorption durch Atomkern  $\Rightarrow$  Kern-Photoeffekt

Ein Photon kann mit Materie wechselwirken, indem es auf ein Elektron der Atomhülle trifft, absorbiert wird und ein Elektron freisetzt. Dieser Prozess entspricht dem sogenannten Photoeffekt (siehe Abbildung 2.1A).



**Abbildung 2.1.** Schematische Darstellung der Wechselwirkungsprozesse von Gammaquanten mit Materie, blau: Atomkern, A: Photoeffekt, B: Compton-Effekt, C: Paarbildung; modifiziert nach [16]

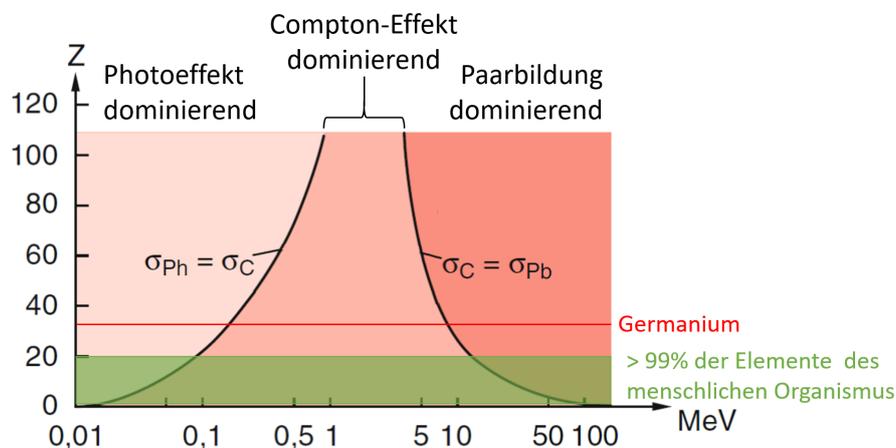
Ist die Photonenenergie ( $E_{\text{Photon}}$ ) größer als die Bindungsenergie des Elektrons ( $E_{\text{Bindung}}$ ), dann wird das Elektron aus der Hülle herausgeschlagen und erhält dabei in erster Näherung deren Differenz als kinetische Energie (siehe Formel 2.7).

$$E_{\text{kin}} = E_{\text{Photon}} - E_{\text{Bindung}} > 0 \quad (2.7)$$

Aufgrund der Impulserhaltung wird ein Teil der Energie ebenfalls auf das Atom übertragen und es erhält einen Rückstoß, welcher jedoch aufgrund der deutlich größeren Masse des Atoms im Vergleich zum Elektron sehr gering ist. Der größte Anteil ( $\approx 80\%$ ) des Photoeffekts wird den Wechselwirkungen mit Elektronen der innersten Schale (K-Schale) zugeordnet, während die äußeren Schalen nur zu einem geringen Teil ( $\approx 20\%$ ) beitragen.

Die Wechselwirkung mit Elektronen der K-Schale kann durch Formel 2.8 beschrieben werden [16]. Der Wirkungsquerschnitt des Photoeffekts ( $\sigma_{Ph}$ ) steigt dabei mit der Ordnungszahl und sinkt mit steigender Photonenenergie (siehe Abbildung 2.2).

$$\sigma_{Ph} \propto \frac{Z^5}{E_{Photon}^{3,5}} \quad (2.8)$$



**Abbildung 2.2.** Dominierende Wechselwirkung von Gammaquanten als Funktion der Ordnungszahl und der Energie des Gammaquanten, rote Linie: Germanium ( $Z=32$ ), grüner Bereich: Elemente, die  $> 99\%$  der Masse des menschlichen Organismus ausmachen; verändert nach [16]

Die inelastische Streuung an quasi freien Hüllenelektronen des Absorbers wird als Compton-Effekt bezeichnet. Das einfallende Photon überträgt dabei einen Teil seiner Energie und seines Impulses auf das Elektron, verändert seine Bewegungsrichtung und das Elektron verlässt die Atomhülle (siehe Abbildung 2.1B). In menschlichem Gewebe und anderen Materialien mit niedriger Ordnungszahl ist dies die dominierende Wechselwirkung im Bereich von  $E_{Photon} = 0,03\text{--}30\text{ MeV}$ . Für Elemente wie Germanium, das beispielsweise als Detektormaterial genutzt wird, mit einer Ordnungszahl von  $Z = 32$  ist der Compton-Effekt im Bereich zwischen  $0,2\text{--}8\text{ MeV}$  die hauptsächlich auftretende Wechselwirkung (siehe Abbildung 2.2).

Eine weitere relevante Wechselwirkung ist die sogenannte Paarbildung, wobei ein Photon im Coulomb-Feld des Atomkerns spontan ein Elektron-Positron-Paar bildet (siehe Abbildung 2.1C). Hierfür muss  $E_{Photon}$  größer sein als das Energie-Massen-Äquivalent für zwei Elektronen:

$$E_{Photon} > 2 \cdot m_e \cdot c^2 = 2 \cdot 511\text{ keV} = 1022\text{ keV} \quad (2.9)$$

Da die Energie- und Impulserhaltung erfüllt sein müssen, kann diese Wechselwirkung nicht im Vakuum stattfinden, sondern benötigt einen dritten Stoßparameter. Dies ist der Atomkern des Absorbermaterials, der den übrigen Impulsbetrag erhält, der nicht von dem Elektron-Positron-

Paar übernommen wurde [19]. Der Wirkungsquerschnitt der Paarbildung ( $\sigma_{Pb}$ ) steigt mit der Ordnungszahl und dem natürlichen Logarithmus der Photonenenergie (siehe Abbildung 2.2):

$$\sigma_{Pb} \propto Z^2 \cdot \ln(E_{Photon}) \quad (2.10)$$

Eine weitere Wechselwirkung ist die elastische Streuung der Gammaquanten an der Atomhülle, wobei sie lediglich ihre Bewegungsrichtung ändern und keine Energie auf den Absorber übertragen. Dieser Prozess ist in biologischem Gewebe mit niedrigen Ordnungszahlen nur unterhalb von etwa 20 keV von Relevanz [19]. Der Energiebereich der emittierten Gammaquanten der Zerfallskaskade des Radons ( $E_{Photon} \geq 242$  keV) übersteigt diese Energie deutlich.

Photonen-Strahlung kann ebenfalls durch den Atomkern absorbiert werden. Hierbei muss die Photonenenergie mindestens der Bindungsenergie des letzten Nukleons des Kerns entsprechen. Diese beginnt für die meisten Absorber bei etwa 6 MeV [19] und übersteigt somit den Energiebereich der Gammaquanten, die nach Radon-Zerfall entstehen.

### 2.1.4. Biologische Wirkung ionisierender Strahlung

Trifft Strahlung auf einen lebenden Organismus, können durch die beschriebenen Wechselwirkungen deterministische und stochastische Schäden entstehen. Deterministische Schäden beschreiben Gewebereaktionen, die erst oberhalb einer gewissen Dosischwelle auftreten und deren Ausprägung eine Dosisabhängigkeit aufweist. Schäden reichen hierbei von Hautrötungen und Haarausfall über die Veränderung des Blutbildes bis hin zu Fibrosierungen von Organen oder Geweben. Im Gegensatz dazu stehen stochastische Schäden, deren Auftretswahrscheinlichkeit nicht aber die Schwere des Schadens mit der Dosis ansteigt. Bei dieser Schadensart muss keine Dosischwelle überschritten werden und es wird daher im Strahlenschutz durch das linear-non-threshold (LNT)-Modell beschrieben [20]. Die Induktion von Krebs oder auch Mutationen in Keimzellen sind beispielsweise stochastische Schäden.

Die Ursache der Schädigung resultiert aus der Wechselwirkung der eintreffenden Strahlung mit den Molekülen und Atomen im Organismus, wobei potentiell alle Bestandteile der Zellen betroffen sein können. Die Wechselwirkung mit Membranen, Zellorganellen oder anderen Biomolekülen führt zu Funktionseinschränkungen oder Funktionsverlust. Dies ist allerdings erst bei Schädigung aller Zellorganellen und Beeinflussung des gesamten Zellstoffwechsels ein erhebliches Problem für die Zelle [19]. Im Gegensatz dazu sind Schädigungen der im Zellkern enthaltenen Desoxyribonukleinsäure (DNS), die die Erbinformationen enthält und nur einmal pro Zelle vorliegt, besonders gefährlich [21].

Je nach Entstehung des Schadens wird dabei zwischen direktem und indirektem Strahlenschaden unterschieden. Bei den direkten Schäden führt die deponierte Energie zur Ionisation oder Anregung der Biomoleküle selbst. Es können zwar beispielsweise direkt Wasserstoffbrückenbindungen der DNS aufgebrochen werden oder Doppelstrangbrüche entstehen, da der Zellkern und die darin enthaltene DNS allerdings nur einen geringen Anteil am Gesamtzellvolumen haben, ist diese direkte Wechselwirkung eher unwahrscheinlich. Im Gegensatz dazu führen die indirekten Schäden erst durch Sekundärprozesse zur Schädigung von Biomolekülen, indem die Strahlung zuerst mit anderen Molekülen wechselwirkt, die dann zu einer Schädigung der Biomoleküle führen. Aufgrund des hohen Anteils am Zellvolumen ist Wasser der hauptsächliche Wechselwirkungspartner, wobei die eintreffende Strahlung zur Radiolyse von Wassermolekülen führt. Die mögliche Anregung der Wassermoleküle führt im Anschluss zur Dissoziation und zur Entstehung von freien, hochreak-

tiven Radikalen. Zusätzlich kann das Wasser ionisiert werden, wobei Ionen und freie Elektronen entstehen. Letztere reagieren dann weiter, wobei es zur Entstehung von etwas weniger reaktivem molekularem Wasserstoff und auch Wasserstoffperoxid kommt. Die entstehenden reaktiven Moleküle können dann im nächsten Schritt mit den Biomolekülen wie der DNS wechselwirken und dort verschiedene Arten von Schäden erzeugen [19].

Die Arten von DNS-Schäden sind vielfältig und reichen von Veränderungen an einzelnen Basen, über DNS-Strangbrüche bis hin zu strukturellen Chromosomenaberrationen. Die DNS-Strangbrüche können weiterhin in Einzel- (Single-strand break (SSB)) oder Doppelstrangbrüche (Double-strand break (DSB)) unterteilt werden, wobei letztere zu Mutationen, zum Absterben von Zellen und zur Krebsentstehung führen können und somit den Organismus stark gefährden. Eine Bestrahlung mit Röntgenstrahlung mit einer Dosis von 1 Gy führt beispielsweise zu mehr als 2000 Basenschäden, etwa 1000 SSBs und etwa 40 DSBs. Um DNS-Schäden zu korrigieren, existieren in Säugetier-Zellen zwar enzymatische Reparaturmechanismen, welche jedoch nicht dazu in der Lage sind, alle entstehenden Schäden zu korrigieren. In der Folge bleiben die Mutationen teilweise erhalten [22].

Die Mutationen können kodierende oder nicht-kodierende Bereiche, die dennoch regulatorische Funktionen haben, betreffen. Die entstehenden Veränderungen können hierbei einerseits zum Zelltod führen, wobei insbesondere der kontrollierte Zelltod durch Apoptose und die nach Bestrahlung häufig auftretende mitotische Katastrophe relevant sind. Die Zellen werden hierbei geordnet abgebaut oder können in Seneszenz übergehen und die weitere Teilung der Zelle und die Weitergabe fehlerhaften Erbgutes wird verhindert. Betrifft dies nur einzelne Zellen, hat dies keine negativen Auswirkungen auf den Organismus [22]. Andererseits können Mutationen auch die Zelleigenschaften verändern, ohne dass dies zum Zelltod führt. Entstehende Veränderungen von Genen, die die Zellteilung beeinflussen, können zu unkontrolliertem und autonomem Wachstum der Zelle und im weiteren Verlauf zur Krebsinduktion führen. Von besonderer Relevanz sind hierbei zum einen Protoonkogene, die Proteine kodieren, die das Wachstum, die Teilung und Differenzierung von Zellen beeinflussen. Zum anderen sind Tumorsuppressor-Gene entscheidend, deren zugehörige Proteine die Zellproliferation hemmen können. Sie wirken somit den Protoonkogenen entgegen und eine Inaktivierung führt unter anderem zu einer Steigerung der Zellteilung [23]. Die Entstehung von Krebs erfordert dabei eine Vielzahl an Modifikationen, zu denen beispielsweise die Veränderung zellulärer Kommunikation oder auch die verminderte Erkennung von Krebszellen durch das Immunsystem gehören [24].

Um die potentielle Gefährdung durch die Strahlung für den Menschen quantifizieren zu können, wurden verschiedene Größen eingeführt. Die Dosis ( $D_T$ ) gibt die mittlere absorbierte Energie pro Gewebemasse ( $m_T$ ) an und kann ebenfalls mit Hilfe des Volumens und der Dichte ausgedrückt werden. Die SI-Einheit ist das Gray, wobei  $1 \text{ Gy} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg}}$ . Die Absorption der Energie ist abhängig vom Absorber, dies entspricht im menschlichen Organismus dem Gewebe. Je nach Absorberatomen sind unterschiedliche Energien notwendig, um die für die Absorption relevanten Sekundärelektronen freizusetzen. Die Dosis bezieht sich daher immer auf ein spezifisches Gewebe [19].

$$D_T = \frac{dE}{dm_T} = \frac{1}{\rho} \frac{dE}{dV} \quad (2.11)$$

Aufgrund unterschiedlicher Wechselwirkungen der verschiedenen Strahlungsarten mit Gewebe (siehe Kapitel 2.1.3), sind die strahlungs-induzierten Schäden nicht nur von der Dosis abhängig, sondern auch von der Strahlungsart sowie deren Energie. Um dies zu berücksichtigen, wurde die

Organ-Äquivalenzdosis ( $H_T$ ) eingeführt, die mit Hilfe sogenannter Strahlungswichtungsfaktoren ( $\omega_R$ ) berechnet wird. Hierfür wird die Dosis der jeweiligen Strahlung in einem betreffenden Gewebe ( $D_{T,R}$ ) mit dem Strahlungswichtungsfaktor multipliziert. Bei einer Kombination aus mehreren Strahlenarten wird die Summe der einzelnen Werte gebildet.

$$H_T = \sum_R \omega_R \cdot D_{T,R} \quad (2.12)$$

Die Strahlungswichtungsfaktoren der für diese Arbeit relevanten Strahlungsarten sind in Tabelle 2.1 gezeigt.

**Tabelle 2.1.** Strahlungswichtungsfaktoren ( $\omega_R$ )

Strahlungsart	$\omega_R$
Alphateilchen	20
Elektronen	1
Photonen	1

Die zusätzliche Abhängigkeit der Effekte von dem bestrahlten Gewebe wird durch Einführung der effektiven Dosis ( $E$ ) mit einbezogen. Hierfür wurden den unterschiedlichen Organen und Geweben sogenannte Gewebewichtungsfaktoren ( $\omega_T$ ) zugeordnet, die ihren Anteil an einem beobachteten Schaden bei einer Ganzkörperbestrahlung berücksichtigen sollen:

$$E = \sum_T \omega_T \cdot H_T = \sum_{T,R} \omega_T \cdot \omega_R \cdot D_{T,R} \quad (2.13)$$

Die Gewebewichtungsfaktoren sind in Tabelle 2.2 gezeigt und entsprechen in Summe 100 %. Zu dem Gewebe, das als „Rest“ bezeichnet wird, gehören die Nebennieren, obere Atemwege, Gallenblase, Herz, Nieren, Lymphknoten, Mundschleimhaut, Bauchspeicheldrüse, das Muskelgewebe, der Dünndarm, Thymus sowie beim Mann die Prostata und bei der Frau die Gebärmutter [20].

**Tabelle 2.2.** Gewebewichtungsfaktoren ( $\omega_T$ )

Gewebe	$\omega_T$	$\sum \omega_T$
Rotes Knochenmark, Dickdarm, Lunge, Magen, Brust, „Rest“	0,12	0,72
Keimdrüsen	0,08	0,08
Blase, Speiseröhre, Leber, Schilddrüse	0,04	0,16
Gehirn, Haut, Knochenoberfläche, Speicheldrüsen	0,01	0,04
Gesamt	–	1

Die Organ-Äquivalenzdosis sowie die effektive Dosis werden mit der Einheit Sievert angegeben, wobei  $Sv = \frac{J}{kg}$ . Dies entspricht ebenfalls der Einheit der Dosis. Um jedoch zu verdeutlichen, dass verschiedene Wichtungsfaktoren ( $\omega_T$ ,  $\omega_R$ ) berücksichtigt wurden, wird eine andere Einheit genutzt [25]. Die Grenzwerte für die maximale Strahlenexposition sowie Informationen zur Strahlenbelastung werden in Sievert angegeben.

## 2.2. Radon

Radon ist ein geruchloses, farbloses, radioaktives Edelgas, wobei vier Isotope in den natürlichen Zerfallsreihen vorkommen ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{219}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Rn}$ ). Weitere ebenfalls radioaktive Isotope können künstlich erzeugt werden und sind in der Umwelt nicht von Relevanz. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit ist mit Radon immer das am häufigsten vorkommende Isotop Radon-222 ( $^{222}\text{Rn}$ ) gemeint.

Radon und seine Zerfallsprodukte sind für mehr als die Hälfte der jährlichen natürlichen Strahlenbelastung in Deutschland [1] verantwortlich und als krebserregend für Lungenkrebs eingestuft [2]. Das Risiko steigt dabei mit der Radonaktivitätskonzentration an. Pro 100  $\frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$  Exposition mit Radon über einen Zeitraum von mehreren Jahren steigt das Risiko, an Lungenkrebs zu erkranken, um etwa 16 % an [26]. Dennoch wird Radon zur Therapie von entzündlichen Krankheiten wie rheumatoider Arthritis eingesetzt [3].

### 2.2.1. Entstehung und Zerfallsreihe

Radon entsteht durch Alphazerfall von Radium-226 ( $^{226}\text{Ra}$ ) und kommt dementsprechend nur an Orten vor, wo Radium im Gestein vorhanden ist. Wenn dies dort zerfällt, kann Radon in Gesteinszwischenräumen in kleine Mikrorisse eindringen. Dieser Prozess wird als „Emanation“ bezeichnet. Diffundiert Radon im Anschluss in die Atmosphäre, wird dies „Exhalation“ genannt. Die Kombination dieser beiden Abläufe beeinflusst die Radonaktivitätskonzentration im Boden und auch in der Luft darüber. In Deutschland sind erhöhte Radonaktivitätskonzentrationen in Wohnungen insbesondere im Erzgebirge, Thüringer Wald, Fichtelgebirge und im Schwarzwald zu finden (siehe Abbildung 2.3).

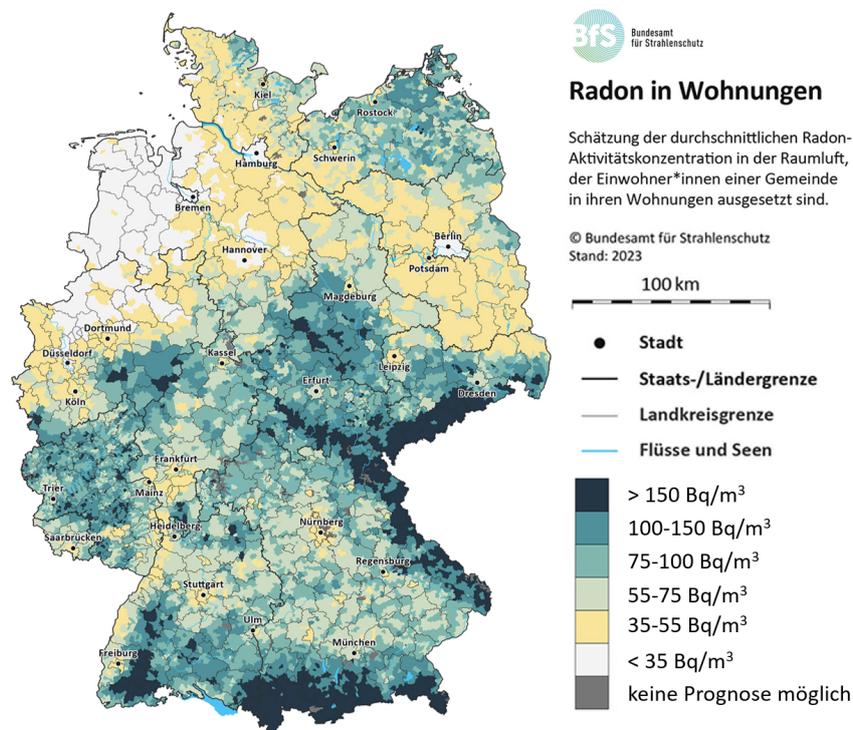
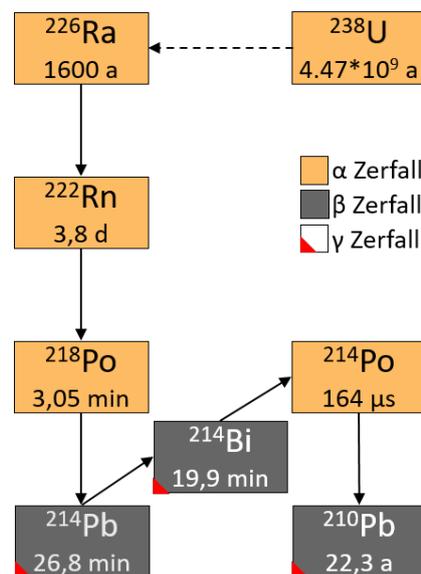


Abbildung 2.3. Schätzung der Radonaktivitätskonzentration in Wohnungen, verändert nach [27]

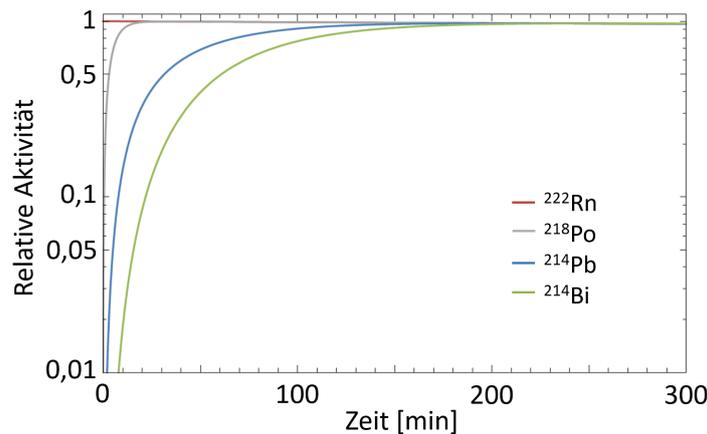
Radon entsteht in der Uran-Radium Reihe beginnend mit Uran-238 ( $^{238}\text{U}$ ), das über mehrere Zerfälle in Radium-226 übergeht. Nach weiteren Alphazerfällen entstehen  $^{222}\text{Rn}$ , Polonium-218 ( $^{218}\text{Po}$ ) und Blei-214 ( $^{214}\text{Pb}$ ). Durch anschließenden Gammazerfall werden Wismut-214 ( $^{214}\text{Bi}$ ) und Polonium-214 ( $^{214}\text{Po}$ ) gebildet, wobei sich Letzteres durch Alphazerfall in Blei-210 ( $^{210}\text{Pb}$ ) umwandelt (siehe Abbildung 2.4). Aufgrund der langen Halbwertszeit von  $^{210}\text{Pb}$  mit 22,3 a muss es für biologische Prozesse nicht genauer berücksichtigt werden, da es aus dem Körper ausgeschieden wird, bevor nennenswerte Mengen zerfallen. Innerhalb dieser Zerfallsreihe sind abgesehen vom gasförmigen Radon alle anderen entstehenden Zerfallsprodukte Schwermetalle. Dies ist für die Risikobewertung von Radon und seinen Tochternukliden entscheidend, da verschiedene Mechanismen der Inkorporation und die Verteilung sowie Deposition im Körper berücksichtigt werden müssen.



**Abbildung 2.4.** Ausschnitt aus der Uran-Radium Reihe mit der jeweiligen Zerfallsart und Halbwertszeit der Nuklide, Daten aus [28]

Radon entsteht als Teil einer Zerfallskaskade, bei der weitere radioaktive Nuklide entstehen. Wird Radon als Ausgangsnuklid betrachtet, sind die Halbwertszeiten der Tochternuklide bis zum  $^{210}\text{Pb}$  deutlich kürzer. Unter der Voraussetzung, dass sich die Anzahl an Radonatomen ausschließlich durch radioaktiven Zerfall und nicht durch beispielsweise Filterung reduziert, nähern sich die relativen Aktivitäten der Tochternuklide der des Radons asymptotisch an. Dieser Zustand wird dann als säkulares radioaktives Gleichgewicht bezeichnet und die effektive Halbwertszeit der Zerfallsprodukte entspricht der des Radons mit 3,8 d.

Zuerst nähert sich die Aktivität von  $^{218}\text{Po}$  der des Radons an und gleicht sich dieser nach etwa 18 min an, gefolgt von  $^{214}\text{Pb}$  nach etwa 3 h und  $^{214}\text{Bi}$  nach etwa 4 h (siehe Abbildung 2.5). Mit einer sehr kurzen Halbwertszeit von 164  $\mu\text{s}$  erreicht die Aktivität von  $^{214}\text{Po}$  nach weniger als einer Sekunde ebenfalls das radioaktive Gleichgewicht und es kann der gleiche Verlauf wie für  $^{214}\text{Bi}$  angenommen werden.



**Abbildung 2.5.** Darstellung der relativen Aktivitäten von  $^{222}\text{Rn}$  (rot),  $^{218}\text{Po}$  (grau),  $^{214}\text{Pb}$  (blau) und  $^{214}\text{Bi}$  (grün) gegen die Zeit, modifiziert nach [29]

### 2.2.2. Biokinetische Modelle

Um die Dosis zu bestimmen, die durch Radon deponiert wird, werden biokinetische Modelle genutzt, die die Verteilung von Radon im menschlichen Körper und den damit verbundenen Ort des Zerfalls berechnen. Daraus können dann Rückschlüsse zu besonders gefährdeten Organen nach Radonexposition gezogen werden.

Es existieren verschiedene dieser Modelle [4, 5, 30, 31], deren grundlegendes Konzept sich sehr ähnelt. Der menschliche Organismus wird hierbei in verschiedene Kompartimente aufgeteilt und die Verteilung von Radon wird mit Hilfe von:

1. dem Blut-Luft Verteilungskoeffizient ( $P_{\text{Blut-Luft}}$ ),
2. den Gewebe-Blut Verteilungskoeffizienten ( $P_i$ ),
3. dem Blutfluss ( $F_i$ ) und
4. dem Gewebvolumen ( $V$ ) der gewählten Kompartimente

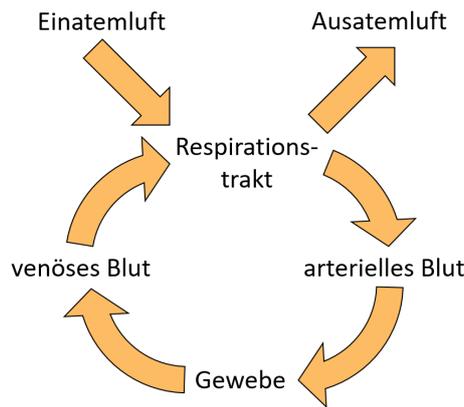
bestimmt. Unterschiede zwischen den Modellen bestehen hauptsächlich in der unterschiedlichen Definition von Kompartimenten sowie unterschiedlicher Auswahl der Gewebe-Blut Verteilungskoeffizienten [31].

Die Verteilungskoeffizienten ( $P$ ) sind dabei definiert als Verhältnis der Radonaktivitätskonzentration ( $c(\text{Rn})$ ) zwischen zwei Kompartimenten, wenn sich diese im Gleichgewicht befinden. Im Allgemeinen beziehen sie sich auf die Verteilung von Radon zwischen Blut und einem anderen Gewebe ( $A$ ). Einen Sonderfall bildet der Blut-Luft Verteilungskoeffizient, der die Verteilung von Radon zwischen Blut und Luft beschreibt. Das zweite Kompartiment entspricht hierbei also der Radonaktivitätskonzentration in der Luft und nicht in einem anderen Gewebe. Die Koeffizienten können mit Hilfe der experimentell bestimmten Löslichkeit ( $S$ ) in dem jeweiligen Gewebe berechnet werden:

$$P_i = \frac{c(\text{Rn})_A}{c(\text{Rn})_{\text{Blut}}} = \frac{S_A}{S_{\text{Blut}}} \quad (2.14)$$

Die ICRP greift in ihrem aktuellsten Bericht zur Bestimmung der Radon-Dosis [10] auf das Modell von Leggett et al. zurück, welches im Folgenden detaillierter beschrieben wird.

Startpunkt des Modells ist die Inhalation von Radon und ein schneller Übergang von Radon aus dem Respirationstrakt in das arterielle Blut, charakterisiert durch den Blut-Luft Verteilungskoeffizienten. Durch den Blutfluss wird Radon im arteriellen Blut im gesamten Körper zu den verschiedenen Geweben transportiert, akkumuliert dort entsprechend des Blut-Gewebe Verteilungskoeffizienten und wird dann über das venöse Blut wieder abtransportiert. Analog zum Übergang von Radon aus der Luft ins Blut wird hierbei ebenfalls angenommen, dass sich das Gleichgewicht zwischen Gewebe und Blut ohne zeitliche Verzögerung einstellt. Radon kann dann über die Ausatemluft wieder abgegeben oder erneut durch das Blut im Organismus verteilt werden (siehe Abbildung 2.6).



**Abbildung 2.6.** Vereinfachte Darstellung des biokinetischen Modells von Leggett et al. [31] zur Berechnung der Dosis

Mathematisch kann hierbei die Veränderung der Aktivität für das jeweilige Gewebe unter zusätzlicher Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls wie folgt beschrieben werden:

$$\frac{dA_i}{dt} = F_i(c(Rn)_{Art} - c(Rn)_{Ven}) - \lambda_{Rn}A_i \quad (2.15)$$

wobei  $F_i$  dem Blutfluss durch das Gewebe entspricht, die Indizes „Art“ und „Ven“ bezeichnen arterielles und venöses Blut. Einsetzen der Beziehung des Verteilungskoeffizienten aus Gleichung 2.14 für das venöse Blut liefert:

$$\frac{dA_i}{dt} = F_i \left( c(Rn)_{Art} - \frac{c(Rn)_i}{P_i} \right) - \lambda_{Rn}A_i \quad (2.16)$$

Die Radonaktivitätskonzentration kann durch die Aktivität und das jeweilige Volumen ausgedrückt werden:

$$c(Rn)_i = \frac{A_i}{V_i} \quad (2.17)$$

Einsetzen dieser Beziehung in Formel 2.16 und umschreiben ergibt:

$$\frac{dA_i}{dt} = \underbrace{\frac{F_i}{V_{Art}} A_{Art}}_{\substack{\text{Radon, das} \\ \text{Gewebe in} \\ \text{arteriellem Blut erreicht}}} - \underbrace{\frac{F_i}{P_i V_i} A_i}_{\substack{\text{Radon, das} \\ \text{Gewebe in} \\ \text{venösem Blut verlässt}}} - \underbrace{\lambda_{Rn} A_i}_{\substack{\text{radioaktiver} \\ \text{Zerfall}}} \quad (2.18)$$

Formel 2.18 enthält den Blut-Gewebe Verteilungskoeffizienten  $P_i$ . Dieser beruht auf experimentell bestimmten Löslichkeitswerten in Ratten nach der Inhalation von Radon von Nussbaum und Hursh [8]. Dies vernachlässigt die Unterschiede zwischen menschlichem und tierischem Gewebe und zusätzlich wurde in ihrer Arbeit die Löslichkeit lediglich für eine Auswahl an Geweben bestimmt (Fett, venöses Blut, Hirn, Leber, Niere, Herz, Testis, Muskel). Andere Gewebe mit unbekannter Löslichkeit wie das Knochenmark sind allerdings aufgrund der darin stattfindenden Hämatopoese im Strahlenschutz von entscheidender Bedeutung. Um die Modelle dennoch nutzen zu können, werden die notwendigen unbekanntes Verteilungskoeffizienten als gewichteter Mittelwert basierend auf der Gewebezusammensetzung berechnet (siehe Formel 2.19). Hierbei setzt sich der Verteilungskoeffizient additiv aus bekannten Koeffizienten zusammen, die mit ihrem angenommenen prozentualen Anteil ( $C_i$ ) an Gewebe A gewichtet werden:

$$P_{A-Blut} = \sum_{i=1}^n C_i \cdot P_i \quad \text{mit} \quad \sum_i C_i = 1 \quad (2.19)$$

Dies wird am Beispiel des roten Knochenmarks detaillierter erläutert. Leggett et al. nehmen basierend auf dem von ICRP veröffentlichtem Referenzmann [32] an, dass sich das rote Knochenmark zu 40 % aus Fett und zu 60 % aus anderem Gewebe zusammensetzt, wobei für Fett ein Verteilungskoeffizient von 11 angenommen wird und für „Anderes“ ein Wert von 0,4. Der Verteilungskoeffizient für rotes Knochenmark ergibt sich dann nach Formel 2.19 zu:

$$P_{\text{rotes Knochenmark-Blut}} = 0,4 \cdot 11 + 0,6 \cdot 0,4 = 4,6 \quad (2.20)$$

Die gleiche Extrapolation der Daten wird auch in anderen ähnlichen biokinetischen Modellen genutzt [4, 5]. Auch hier beruhen die eingegebenen Verteilungskoeffizienten auf den Daten von Nussbaum und Hursh. Aufgrund der eingeschränkten Datenlage werden teilweise unterschiedliche Verteilungskoeffizienten als Eingabeparameter genutzt, da beispielsweise Khursheed die Werte von Muskel auch für die Leber und die Kategorie „Andere“ übernimmt. Dies begründet er damit, dass Zweifel an der Verlässlichkeit der Daten von Nussbaum und Hursh bestehen und andere Edelgase ähnliche Verteilungen in diesen Arten von Gewebe zeigen [5].

Unterschiedliche Eingabeparameter führen logischerweise zu Diskrepanzen in der berechneten Dosis und erhöhen die Ungenauigkeit der Modelle. Auffällig ist insbesondere die Tatsache, dass die Verteilungskoeffizienten auf einer Veröffentlichung beruhen, die Untersuchungen im Tiermodell beschreibt. Die darin gemessene Löslichkeit von Radon in Blut ist in jedem der Verteilungskoeffizienten inkludiert, die in den biokinetischen Modellen benötigt werden. Zusätzlich müssen unbekannte Werte anhand der Gewebezusammensetzung rechnerisch bestimmt werden. Diese beiden Faktoren verdeutlichen die Abhängigkeit der Modelle von experimentellen Daten zur Radon-Löslichkeit in Blut und in Gewebe mit bislang unbekannter Löslichkeit.

### 2.2.3. Therapie

Trotz des erläuterten erhöhten Krebsrisikos wird Radon zur Therapie entzündlicher Krankheiten genutzt, wobei diese in verschiedenen Formen stattfinden kann. Radon kann beispielsweise in Inhalationskuren über die Lunge aufgenommen werden. Dafür begeben sich die Patienten in sogenannte Heilstollen und atmen in mehreren Sitzungen für jeweils etwa 1 h radonhaltige Luft ein. Eine weitere Möglichkeit bietet das Baden in radonhaltigem Wasser für etwa 20 min, wobei der Aufbau dieser Bäder dabei maßgeblich den Aufnahmemechanismus von Radon beeinflusst. Bei offenen Bädern wird es hauptsächlich über die Lunge und nur teilweise über die Haut aufge-

nommen. In geschlossenen Bädern hingegen wird das Wasserbecken bedeckt, die Diffusion von Radon in die Atemluft des Patienten minimiert, sodass die Hauptaufnahme über die Haut erfolgt [3]. Seltener Therapieformen sind Trinkkuren oder auch Anwendungen mit verdampftem radonhaltigen Wasser [33]. Nach erfolgter Therapie berichten Patienten von einer länger anhaltenden verbesserten Beweglichkeit und verringerten Schmerzen, einhergehend mit einer Reduzierung von notwendigen Schmerzmitteln [34, 35].

Diesen positiven Auswirkungen der Therapie liegen Veränderungen des Immunsystems zugrunde, die mit der Freisetzung verschiedener Faktoren wie Zytokinen, Hormonen und Wachstumsfaktoren zusammenhängen [3]. Es wird angenommen, dass Radon dazu beiträgt, die oxidative Stressantwort des Immunsystems [36] zu beeinflussen und dadurch in der Lage ist Reaktive Sauerstoffspezies (ROSs), die zu einer Entzündungsreaktion führen können, zu reduzieren. Dies wiederum beeinflusst den Immunstatus der Patienten und kann dadurch beispielsweise bei Patienten mit Erkrankungen des Bewegungsapparates zur Reduktion des Knochenabbaus führen.

### 2.3. Radon-Zerfallsprodukte

Die beim Zerfall von Radon entstehenden Tochternuklide sind wie bereits beschrieben als krebserregend für Lungenkrebs eingestuft. Im Gegensatz zu Radon handelt es sich bei den Zerfallsprodukten um Schwermetalle, die dementsprechend andere Eigenschaften aufweisen als das Edelgas Radon.

Die beiden beim Zerfall entstehenden Polonium-Nuklide ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ) durchlaufen einen Alpha-Zerfall, während sich  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  durch einen Betazerfall verbunden mit Gammazerfällen umwandeln. Dies spielt bei der Risikobewertung eine entscheidende Rolle, da Alphateilchen einen deutlich höheren Schaden anrichten können als Beta- und Gammastrahlung. Dies wird auch bei Betrachtung des Strahlungswichtungsfaktors mit einem Wert von  $\omega_R = 20$  deutlich.

#### 2.3.1. Größenverteilung

Im Gegensatz zu Radon, das als Edelgas keine chemischen Interaktionen mit anderen Atomen eingeht und somit atomar vorliegt, können die Zerfallsprodukte mit Atomen reagieren und an Oberflächen oder Partikeln anlagern. Letzteres führt zur Entstehung unterschiedlicher Größenfraktionen.

Ausgehend vom Alphazerfall des Radons entstehen zu 88 % positiv geladene  $^{218}\text{Po}$  Ionen und 12 % neutrale  $^{218}\text{Po}$  Atome [37, 38]. Die positiv geladenen  $^{218}\text{Po}$  Atome reagieren mit Spurengasen und Wasserdampf aus der Luft und werden neutralisiert. Die dabei entstehenden radioaktiven Partikel sind im Durchschnitt etwa 1 nm groß und werden als freie Zerfallsprodukte bezeichnet [10].

Der dominierende Prozess der Neutralisation in Anwesenheit von Sauerstoff ist der Elektronentransfer. Das positiv geladene Polonium-218 reagiert mit Sauerstoff und bildet Poloniumdioxid ( $^{218}\text{PoO}_2^+$ ) [39]. Dies hat ein Ionisationspotential ( $E_{\text{Ionisation}}$ ) von  $10,44 \pm 0,05$  eV [40] und es übersteigt das von Spurengasen wie Stickstoffmonoxid ( $E_{\text{Ionisation}} = 9,25$  eV) oder Stickstoffdioxid ( $E_{\text{Ionisation}} = 9,79$  eV), daher ist  $^{218}\text{PoO}_2^+$  in der Lage, diese zu ionisieren [39]. Das übertragene Elektron sorgt dann für die Neutralisation des Poloniumdioxids ( $^{218}\text{PoO}_2$ ). Dieser Prozess ist abhängig von der Verfügbarkeit an Elektronen von Molekülen mit niedrigerem Ionisierungspotential [41]. Da die Elektronen durch eine einzelne Kollision übertragen werden können, ist dies der schnellste ablaufende Prozess [40].

Ein weiterer, etwas langsamerer Prozess zur Neutralisierung ist der Elektronenfang. Hierbei wechselwirkt das entstandene Alphateilchen des Radon-Zerfalls mit dem Absorber und setzt

Elektronen frei. Umgebende Moleküle mit hoher Elektronenaffinität, wie die in Wasserdampf vorhandenen Wassermoleküle oder das in der Luft vorhandene Stickstoffdioxid, reagieren mit den Elektronen. Die dabei entstehenden Ionen führen lokal zu einer Erhöhung negativer Ladungen in der Umgebung des positiv geladenen  $^{218}\text{Po}$  [42]. Die negativen Ionen diffundieren dann zum  $^{218}\text{Po}$  und neutralisieren es [43].

Eine weitere Möglichkeit, um die geladenen Zerfallsprodukte zu neutralisieren, ist die Rekombination mit Ionen. Die beim Zerfall entstehende Strahlung erzeugt positive und negative Ionen. Diese können entweder miteinander rekombinieren oder auch das positiv geladene  $^{218}\text{Po}$  neutralisieren [41]. Dieser Prozess spielt jedoch lediglich eine untergeordnete Rolle.

Im Anschluss können die Zerfallsprodukte an vorhandenen Aerosole anheften, wodurch die radioaktiven Partikel größer werden und im Bereich von 10 nm bis zu einigen  $\mu\text{m}$  liegen und sich somit über mehrere Größenordnungen erstrecken. Sie werden dann als angelagerte Zerfallsprodukte bezeichnet.

Diese Anlagerungsrate ( $X$ ) der freien Zerfallsprodukte ist von der Aerosolgrößenverteilung ( $Z(r)$ ) und dem Anlagerungskoeffizienten ( $\beta(r)$ ) abhängig:

$$X = \int_0^{\infty} \beta(r)Z(r)dr \quad (2.21)$$

Der Anlagerungskoeffizient für kleine Partikel wird durch die kinetische Gastheorie beschrieben und hängt unter anderem von der mittleren thermischen Geschwindigkeit ( $\nu_0$ ) ab [44]:

$$\beta(r) = \frac{1}{4} \pi \cdot \nu_0 \cdot (2r)^2 \quad (2.22)$$

Die Größe der angelagerten Zerfallsprodukte ist abhängig von der atmosphärischen Aerosolgrößenverteilung (siehe Formel 2.21), an die sie anlagern. Das atmosphärische Aerosol wird basierend auf dessen Entstehungsprozessen wie beispielsweise der Kondensation von Gasen und Wasserpartikeln in mehrere Moden unterteilt [45]. Die Messung der Größenverteilung von Radon-Zerfallsprodukten zeigte eine trimodale Verteilung [46] und analog zur Bezeichnung des Aerosols im Allgemeinen übernimmt die ICRP die Einteilung in den Nukleationsmodus (10–100 nm), Akkumulationsmodus (100–450 nm) und den Coarse-Modus ( $> 1000$  nm).

Durch den radioaktiven Zerfall von angelagerten Zerfallsprodukten können sich diese aufgrund der freiwerdenden Rückstoßenergie allerdings auch wieder vom Aerosolpartikel lösen. Das Ausmaß wird durch den Rückstoß-Parameter beschrieben. Das Mutternuklid wird dementsprechend noch den angelagerten Zerfallsprodukten zugeordnet, während das Tochternuklid zu den freien Zerfallsprodukten gezählt wird. Dies hat dementsprechend einen Einfluss auf die Verteilung zwischen freien und angelagerten Zerfallsprodukten [47]. Während die Energien des Beta- und Gammazerfalls zu gering sind, ist die beim Alphazerfall entstehende Rückstoßenergie ( $\approx 100$  keV) groß genug, sodass sich das Tochternuklid vom Aerosolpartikel lösen kann. Der Rückstoß-Parameter sinkt hierbei mit der Größe des Aerosolpartikels und wird zusätzlich durch dessen Zusammensetzung beeinflusst [48]. Die Berechnung des Rückstoß-Parameters für die in der Literatur beschriebene trimodale Verteilung der angelagerten Zerfallsprodukte (Nukleations- (50 nm), Akkumulations- (250 nm), Coarse-Modus (1500 nm)) und die Annahme unterschiedlicher Zusammensetzung der Aerosolpartikel liefert folgende Rückstoß-Parameter [48]:

Tabelle 2.3. Berechnete Rückstoß-Parameter [48]

Aerosolpartikelgröße [nm]	Aerosolzusammensetzung	Rückstoß-Parameter
50 (Nukleationsmodus)	NO <sub>2</sub>	1
	SO <sub>2</sub>	0,95
250 (Akkumulationsmodus)	C	0,51
1500 (Coarse-Modus)	SiO <sub>2</sub>	0,52

Im Rahmen dieser Arbeit werden basierend auf dem genutzten Messgerät die freien Zerfallsprodukte ( $< 5$  nm), Cluster (20–100 nm) und angelagerten Zerfallsprodukte ( $> 100$  nm) unterschieden. Wie diese Unterscheidung messtechnisch umgesetzt wird, wird in Kapitel 3.2.2 genauer erklärt.

### 2.3.2. Depositionsmechanismen

Wie in Kapitel 2.2.1 beschrieben, haben die Zerfallsprodukte bis zum  $^{210}\text{Pb}$  eine kürzere Halbwertszeit als Radon. In der Luft erreichen sie dennoch nicht das säkulare radioaktive Gleichgewicht, da sich ihr Anteil durch Anlagerung an Oberflächen reduziert. Dieses Ungleichgewicht wird durch den F-Faktor beschrieben, worauf im nachfolgenden Kapitel genauer eingegangen wird. Die Anlagerung an Oberflächen ist abhängig von der Partikelgröße und wird hauptsächlich durch Impaktion, Sedimentation und Diffusion beeinflusst.

Die Impaktion beschreibt das Phänomen, dass ein Partikel seine Trajektorie aufgrund der Trägheit beibehält, auch wenn sich die Richtung des Luftflusses ändert. In der Lunge ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Partikel durch Impaktion (I) abgeschieden wird, proportional zur Strömungsgeschwindigkeit ( $\nu_{\text{Air}}$ ) und zum Öffnungswinkel ( $\theta$ ) der Bifurkation und antiproportional zum Radius des Atemweges ( $r_{\text{Atemweg}}$ ):

$$I \propto \frac{\nu_{\text{Air}} \cdot \sin(\theta)}{r_{\text{Atemweg}}} \quad (2.23)$$

Bei geringerer Partikelgröße spielt die Ablagerung durch Impaktion eine geringere Rolle. Sie ist für Partikel  $> 2 \mu\text{m}$  der dominierende Anlagerungsprozess [11].

Die Sedimentation ist das Absinken von Teilchen aufgrund der auf sie wirkenden Gewichtskraft und ist für Partikel einer Größe von  $0,1\text{--}50 \mu\text{m}$  relevant. Partikel in der Luft erreichen eine maximale Sinkgeschwindigkeit ( $\nu_{\text{Partikel}}$ ), bei der die Reibung ( $F_{\text{Reibung}}$ ) [49] der Differenz aus Gewichtskraft ( $F_{\text{Gewicht}}$ ) und Auftriebskraft ( $F_{\text{Auftrieb}}$ ) entspricht:

$$F_{\text{Reibung}} = F_{\text{Gewicht}} - F_{\text{Auftrieb}} \quad (2.24)$$

$$6 \pi \cdot r \cdot \eta \cdot \nu_{\text{Partikel}} = \rho_{\text{Partikel}} \cdot V_{\text{Partikel}} \cdot g - \rho_{\text{Fluid}} \cdot V_{\text{Partikel}} \cdot g \quad (2.25)$$

Mit der Annahme, dass die Partikel kugelförmig sind mit  $V = \frac{4}{3} \pi \cdot r^3$  und umstellen der Gleichung nach der Sinkgeschwindigkeit ergibt:

$$\Rightarrow \nu_{\text{Partikel}} = \frac{2 (\rho_{\text{Partikel}} - \rho_{\text{Fluid}}) \cdot r^2 \cdot g}{9 \eta} \quad (2.26)$$

Hierbei entspricht  $r$  dem Partikelradius,  $\eta$  der Viskosität des umgebenen Mediums,  $\rho$  der jeweiligen Dichte,  $V$  dem Volumen des Partikels und  $g$  ist die Schwerebeschleunigung, die sich aus Gravitations- und Zentrifugalanteil zusammensetzt [11]. Die Gültigkeit der Gleichung für die Reibung beruht dabei auf folgenden Annahmen:

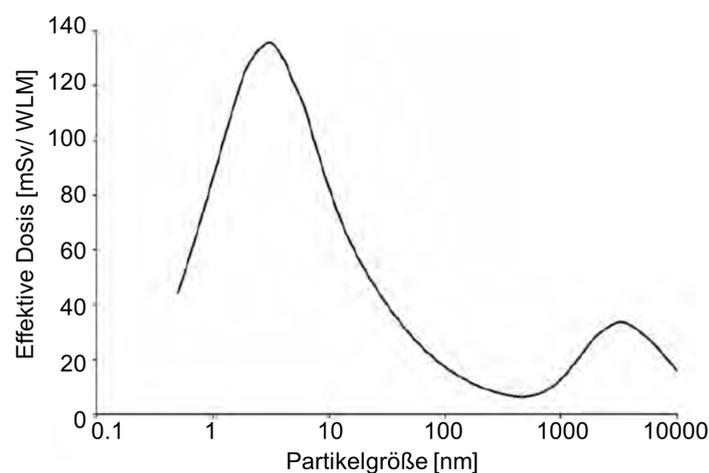
- Sphärische Partikel
- Laminarer Fluss des umgebenden Fluids (Hier: Luft)
- Keine Wechselwirkung zwischen den Partikeln
- Glatte Oberflächen

Der dritte wichtige Depositionsmechanismus für Radon-Zerfallsprodukte ist die Diffusion, die dominierend für Partikel  $< 0,2 \mu\text{m}$  ist. Sie beruht auf der zufälligen thermischen Brown'schen Molekularbewegung der Teilchen. Sie ist daher proportional zur Diffusionskonstante ( $D$ ), die unter Berücksichtigung der Partikelgröße wie folgt berechnet werden kann:

$$D = \frac{C_c \cdot k_B \cdot T}{3\pi \cdot \eta \cdot (2r)} \quad (2.27)$$

Hierbei entspricht  $C_c$  der Cunningham-Korrektur,  $k_B$  der Boltzmann-Konstanten und  $T$  der Temperatur [50]. Dies bildet die von Einstein [51] hergeleiteten Form des Diffusionskoeffizienten unter Berücksichtigung der Cunningham-Korrektur ab. Diese ist notwendig, da die Partikel, die durch Diffusion deponiert werden, kleiner als  $0,2 \mu\text{m}$  sind. Insbesondere die freien Zerfallsprodukte mit einer Größe  $< 5 \text{ nm}$  sind deutlich kleiner als die mittlere freie Weglänge der Moleküle in Luft im Bereich von  $64\text{--}68 \text{ nm}$  [52]. Dies führt dazu, dass die Partikel durch das Medium „rutschen“, bevor sie mit genügend Gasmolekülen wechselwirken, bis die von Stokes angenommene Reibungskraft auf sie wirkt [53].

Die Kombination der verschiedenen Depositionsmechanismen sorgt für ein Depositionsminimum für Partikel im Größenbereich zwischen  $200\text{--}500 \text{ nm}$  [11]. Die Berechnung der effektiven Dosis basierend auf der Deposition und dem Expositionsszenario verbunden mit entsprechenden Parametern der Atmung führt ebenfalls zu einem Minimum der effektiven Dosis (siehe Abbildung 2.7) im Bereich von circa  $100\text{--}1000 \text{ nm}$  [10].



**Abbildung 2.7.** Effektive Dosis eines Referenzarbeiters in Abhängigkeit der Partikelgröße, verändert nach [10]

## 2.4. Kenngrößen der Radonexposition

Zur Beschreibung der Radonexposition werden verschiedene Kenngrößen herangezogen, um die Gefahren besser abschätzen zu können. Im Strahlenschutz werden Radon und seine vier kurzlebigen Zerfallsprodukte  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  und  $^{214}\text{Po}$  zur Beschreibung der Exposition genutzt [54]. Es werden nur Zerfälle bis zum  $^{210}\text{Pb}$  berücksichtigt, da dies aufgrund seiner langen Halbwertszeit (22,3 a) aus dem Körper ausgeschieden wird, bevor es in nennenswerten Mengen zerfallen kann.

Die vorhandene Menge an Radon wird hierbei meist mit Hilfe der Aktivität pro Volumeneinheit als Radonaktivitätskonzentration ( $c(\text{Rn})$ ) mit der Einheit  $\frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$  beschrieben. Zur Angabe in Wasser wird häufig die Einheit  $\frac{\text{Bq}}{\text{l}}$  verwendet.

$$c(\text{Rn}) = \frac{A_{\text{Rn}}}{V} \quad (2.28)$$

Zusätzlich ist im Strahlenschutz die Größe der potentiellen Alphaenergie ( $\epsilon_i$ ) gebräuchlich, diese entspricht der Alphaenergie, die durch den Zerfall eines Nuklids (i) bis zur Entstehung von  $^{210}\text{Pb}$  frei wird. Hierbei wird aufgrund ihrer höheren Zerfallsenergie und des höheren Strahlungswichtungsfaktors (siehe Kapitel 2.1.4) im Vergleich zu den beta- und gammastrahlenden Zerfallsprodukten ausschließlich der Beitrag des Alphazerfalls von  $^{218}\text{Po}$  und  $^{214}\text{Po}$  berücksichtigt. Der Alphazerfall von  $^{218}\text{Po}$  erzeugt ein Alphateilchen mit der Energie von 6,00 MeV und  $^{214}\text{Po}$  eines mit 7,69 MeV [28], was zu folgenden potentiellen Alphaenergien führt:

**Tabelle 2.4.** Potentielle Alphaenergie ( $\epsilon_i$ ) der Radon-Zerfallsprodukte

Nuklid	$\epsilon_i$ [MeV]
$^{218}\text{Po}$	13,69
$^{214}\text{Pb}$	7,69
$^{214}\text{Bi}$	7,69
$^{214}\text{Po}$	7,69

Häufig wird die potentielle Alphaenergiekonzentration (PAEK) ( $c_p$ ) einer Mischung von Radon-Zerfallsprodukten angegeben, die der potentiellen Alphaenergie pro Volumeneinheit entspricht. Sie setzt sich aus der Summe der einzelnen PAEK der Nuklide zusammen und wird mit der Einheit  $\frac{\text{MeV}}{\text{m}^3}$  angegeben.

$$c_p = c_{p,^{218}\text{Po}} + c_{p,^{214}\text{Pb}} + c_{p,^{214}\text{Bi}} + c_{p,^{214}\text{Po}} \quad (2.29)$$

Die PAEK kann auch durch die Aktivitätskonzentrationen der einzelnen Nuklide mit Berücksichtigung ihrer jeweiligen potentiellen Alphaenergie ( $\epsilon_i$ ) und Zerfallskonstanten ( $\lambda$ ) angegeben werden:

$$c_p = \sum_i \epsilon_i \cdot \frac{c_i}{\lambda_i} \quad (2.30)$$

Die Radon-Zerfallsprodukte werden zusätzlich durch die Equilibrium Equivalent Concentration (EEC) beschrieben, die einer fiktiven Radonaktivitätskonzentration ( $c_{\text{eq}}$ ) mit der gleichen PAEK wie die der vorhandene Mischung der Zerfallsprodukte entspricht.

Bei der EEC wird allerdings davon ausgegangen, dass Radon mit seinen Zerfallsprodukten im radioaktiven Gleichgewicht ist und die Aktivitäten sowie die Aktivitätskonzentrationen gleich sind:

$$c_{eq} = c_{222Rn} = c_{218Po} = c_{214Pb} = c_{214Bi} = c_{214Po} \quad (2.31)$$

Gleichsetzen der angenommenen PAEK im radioaktiven Gleichgewicht mit der vorhandenen Mischung im Ungleichgewicht und umstellen nach der fiktiven Radonaktivitätskonzentration führt zu [47]:

$$c_{eq} = \frac{\sum_i \frac{c_i \cdot \epsilon_i}{\lambda_i}}{\frac{\epsilon_i}{\lambda_i}} \quad (2.32)$$

Die EEC hat dementsprechend die Einheit einer Aktivitätskonzentration  $\frac{Bq}{m^3}$ .

Wie in Kapitel 2.3.2 beschrieben, können die Zerfallsprodukte an Oberflächen anlagern, wodurch ein Ungleichgewicht zu Radon in der Luft entsteht. Um dieses Ungleichgewicht zu quantifizieren, wurde der F-Faktor eingeführt, der als Quotient der EEC zur tatsächlich vorhandenen Radonaktivitätskonzentration definiert ist:

$$F = \frac{c_{eq}}{c(Rn)} \quad (2.33)$$

Er variiert abhängig von verschiedenen Faktoren wie beispielsweise der Temperatur, der relativen Luftfeuchtigkeit [55] und der Ventilation [56]. Diese beeinflussen die Aerosolgrößenverteilung der Luft und damit die Anlagerung der Zerfallsprodukte an das vorhandene Aerosol [57], sowie zusätzlich die Ablagerung an Oberflächen, wodurch die Zerfallsprodukte in der Luft reduziert werden [58]. Diese Faktoren können ebenfalls das Verhältnis zwischen freien Zerfallsprodukten, Clustern und angelagerten Zerfallsprodukten verändern. Da die Größenfraktionen unterschiedliche Eigenschaften haben und insbesondere die kleinsten Zerfallsprodukte zum größten Teil der effektiven Dosis beitragen (siehe Abbildung 2.7), ist im Strahlenschutz der Anteil der freien Zerfallsprodukte ( $f_{frei}$ ) von Interesse. Dieser beschreibt das Verhältnis der PAEK der freien Zerfallsprodukte zur PAEK der insgesamt vorhandenen Zerfallsprodukte in der Luft:

$$f_{frei} = \frac{c_{p, frei}}{c_p} \quad (2.34)$$

## 2.5. Inkorporation

Ist der Mensch Radon und seinen Zerfallsprodukten ausgesetzt, können diese abhängig vom jeweiligen Expositionsszenario in den menschlichen Organismus aufgenommen werden. Hierbei können folgende Inkorporationswege unterschieden werden:

- Respirationstrakt – Aufnahme über die Atmung
- Haut – Ablagerung von Radon-Zerfallsprodukte oder Diffusion von Radon in die Hautschichten
- Gastrointestinaltrakt – Aufnahme über die Nahrung

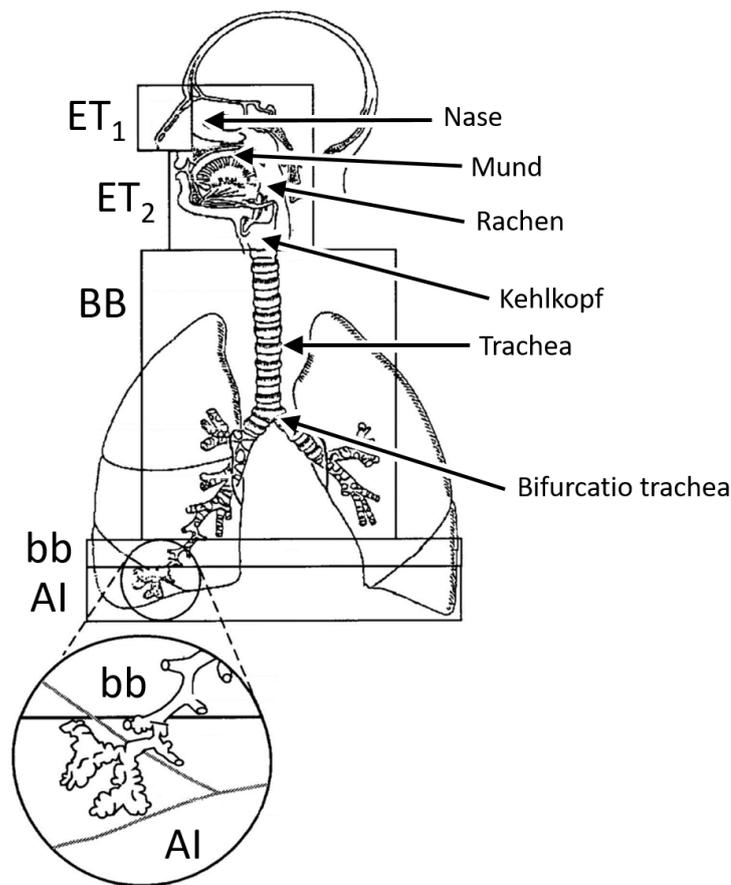
Im Folgenden wird sich auf die Inkorporation durch das Einatmen von Radon und seinen Zerfallsprodukten beschränkt, da dies der häufigsten Art der Exposition entspricht [3]. Die Aufnahme erfolgt über den Respirationstrakt, der sich vom Nasen-Mundbereich bis zu den Alveolen, den kleinsten Strukturelementen der Lunge erstreckt. Die Luft kann über die Nase oder den Mund

eingeatmet werden und strömt dann in den Rachen, wobei diese Bereiche als obere Atemwege zusammengefasst werden. Die darauffolgenden unteren Atemwege bestehen aus Kehlkopf, Trachea und der Lunge (siehe Abbildung 2.8).

Die Lunge besteht in erster Näherung aus einem verzweigten System aus Hohlzylindern beginnend mit der Trachea, die sich an der „Bifurcatio trachea“ in den linken und rechten Hauptbronchus aufteilt [59]. Die dabei entstehenden Tochterzweige sind kürzer und haben einen geringeren Durchmesser als die Trachea. Dieses Gabelungsmuster setzt sich immer weiter fort und die verschiedenen Zweige werden dann auf Grundlage der Abspaltungen (Bifurkationen) nummeriert und in unterschiedliche Generationen eingeteilt, wobei die Trachea meist als 0. Generation in der Literatur zu finden ist. Die meisten Aufspaltungen sind hierbei zweigeteilt, wenngleich auch dreigeteilte Aufspaltungen in der Lunge vorhanden sind, wie dies in der Verzweigung des rechten Hauptbronchus zu finden ist [60]. Diese entspricht dem Übergang von der 1. zur 2. Generation. Die Alveolen bilden die Endabschnitte der Lunge und dienen dem Gasaustausch zwischen der Atemluft und dem Blut. Dies findet über die Blut-Luft-Schranke statt, die etwa  $2,2 \mu\text{m}$  dick ist und sich aus einem Flüssigkeitsfilm mit biologisch aktiven Substanzen, Alveolarepithelzellen (Pneumozyten des Typs I und II), der Basallamina, Kapillarendothelzellen sowie dem Blutplasma und der Erythrozytenmembran zusammensetzt [59, 61]. Die Dicke dieser Abgrenzung ist entscheidend, da der Gasaustausch ausschließlich über Diffusion ( $D$ ) stattfindet und die notwendige Zeit ( $t$ ) mit dem Quadrat der mittleren Strecke ( $\langle x^2 \rangle$ ) ansteigt (siehe Formel 2.35) [51]. Je dünner die entsprechende Grenzschicht ist, desto schneller ist der Gasaustausch.

$$t = \frac{\langle x^2 \rangle}{2D} \quad (2.35)$$

Im Strahlenschutz wird häufig das Modell der ICRP verwendet, das sogenannte Human Respiratory Tract Model (HRTM), das den Respirationstrakt in vier Bereiche unterteilt: extrathorakaler Bereich (ET), Bronchialbereich (BB), bronchiolärer Bereich (bb) und alveolar-interstitieller Bereich (AI) (siehe Abbildung 2.8). Der extrathorakale Bereich umfasst die Nase, Mund, Rachen und Kehlkopf. Dieser Bereich wird noch weiter unterteilt, wobei  $\text{ET}_1$  nur den äußeren Bereich der Nase umfasst, während  $\text{ET}_2$  die Nasenhöhle und den gesamten Rest des extrathorakalen Bereichs einschließt. Der Bronchialbereich beginnt mit der Trachea und inkludiert die Atemwege, die durch mukoziliäre Clearance gereinigt werden (Generationen 1–8). Anschließend folgt der bronchioläre Bereich mit den Atemwegsgenerationen 9–15. Der Respirationstrakt endet mit den Alveolen, die für den Gasaustausch verantwortlich sind [60, 62].



**Abbildung 2.8.** Respirationstrakt mit wichtigen Strukturen der Atemorgane und Einteilung entsprechend des HRTM in extrathorakalen Bereich (ET), Bronchialbereich (BB), bronchiolären Bereich (bb) und alveolar-interstitiellen Bereich (AI) nach [60], Grafik verändert nach [62]

Neben der Anatomie des Respirationstraktes ist der Atemzyklus ein weiterer Faktor, der bei der Inkorporation von Radon und seinen Zerfallsprodukten berücksichtigt werden muss. Der Atemzyklus setzt sich aus der Inspiration und der Expiration zusammen, die sich periodisch abwechseln. Das Luftvolumen, das bei der Inspiration eingeatmet und bei der Expiration ausgeatmet wird, wird als Atemzugvolumen (TV) oder auch Tidalvolumen bezeichnet und beträgt beim Menschen in Ruhe etwa 500 ml [23]. Durch ein Reservevolumen beider Phasen ist die Steigerung des Atemzugvolumens möglich, wobei eine gewisse Menge an Luft auch nach vollständiger Expiration immer in der Lunge zurückbleibt (Residualvolumen).

Das Atemzugvolumen zusammen mit der Atemfrequenz (RR) entspricht dem Atemzeitvolumen, das bei gesteigerter physischer Aktivität durch Erhöhung beider Parameter (Atemzugvolumen, Atemfrequenz) vergrößert wird. Die Atemfrequenz zeigt auch im Ruhezustand größere interindividuelle Schwankungen (10–18 Atemzüge pro Minute) [23]. Die ICRP unterscheidet zwischen verschiedenen physischen Aktivitäten der exponierten Person und passt deren Atemzugvolumen und -frequenz an. Diese sind in Tabelle 2.5 gezeigt.

**Tabelle 2.5.** Aktivitäts- und geschlechtsspezifische Atemparameter des HRTM der ICRP [60] mit Atemzugvolumen (TV), Atemfrequenz (RR) und Atemminutenvolumen

Aktivität	Geschlecht	TV [l]	RR [ $\frac{1}{min}$ ]	Atemminutenvolumen [ $\frac{l}{min}$ ]
Ruhend	Mann	0,625	12	7,5
	Frau	0,444	12	5,28
Sitzend	Mann	0,750	12	9,0
	Frau	0,464	14	5,57
Leichte Aktivität	Mann	20	1,25	25,0
	Frau	21	0,992	20,83
Hohe Aktivität	Mann	26	1,923	50,0
	Frau	33	1,364	45,01

### 2.5.1. Inkorporation von Radongas

Aufgrund der bereits beschriebenen unterschiedlichen Eigenschaften von Radon und seinen Zerfallsprodukten, müssen verschiedene Mechanismen nach der Inkorporation durch Inhalation berücksichtigt werden. Wird Radon eingeatmet, können drei unterschiedliche Prozesse folgen:

1. Expiration
2. Zerfall in der Lunge
3. Lösung im Blut

Nach Inhalation ist die Aufenthaltsdauer von Radon im Respirationstrakt innerhalb eines Atemzuges ( $\approx 5$  s) deutlich geringer als seine Halbwertszeit von 3,8 d. Berechnungen basierend auf einem biokinetischen Modell zeigten, dass der größte Anteil von Radon (99 %) über die Atemluft wieder aus dem Körper ausgeschieden wird [4].

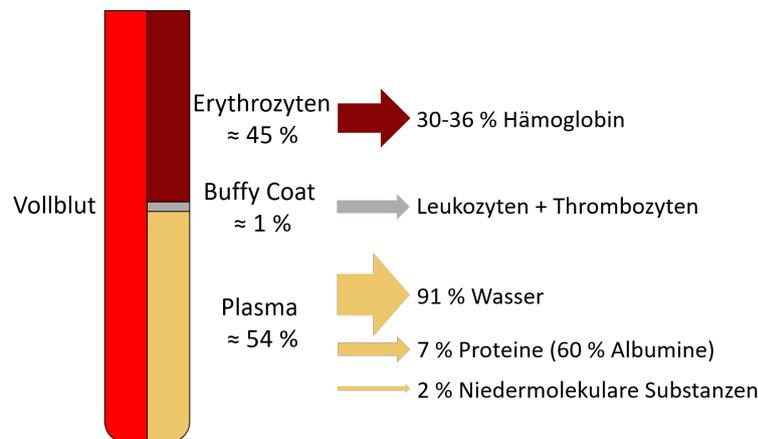
Dennoch kann Radon in der Lunge zerfallen, wobei dies laut ICRP etwa  $\frac{1}{3}$  der Gesamtdosis durch Radon selbst ausmacht. Die restlichen  $\frac{2}{3}$  der Gesamtdosis werden durch Radon verursacht, das sich über das Blut im Organismus verteilt und in Gewebe akkumulieren kann (siehe Kapitel 2.2.2). Hierbei diffundiert Radon in den Alveolen durch die Blut-Luft-Schranke in das Blut, wobei die ICRP aufgrund des sehr großen Oberflächen-Volumen-Verhältnis und der geringen Diffusionsbarriere davon ausgeht, dass die Sättigung von Radon im Blut schnell erreicht wird [10]. Aktuellere Messungen der Ausatemluft nach der Inhalation von Radon haben jedoch gezeigt, dass signifikant weniger Radon direkt ausgeatmet wird, als bisher angenommen [63]. Auch die Messung der Radon-Zerfallsprodukte in einem Patienten im Bereich des Thorax und des Abdomens nach einstündiger Radonexposition zeigte höhere Dosiswerte, als in bisherigen Modellen angenommen [6]. Diese Diskrepanzen sind fehlenden experimentellen Daten geschuldet, die für eine Verbesserung der berechneten Dosiswerte notwendig werden.

Die Aufnahme von Radon in das Blut ist der erste Schritt, um dann im Organismus verteilt werden zu können, wobei die Menge an gelöstem Radon durch die Zusammensetzung des Blutes beeinflusst wird. Blut setzt sich aus den zellulären Bestandteilen sowie dem flüssigen Blutplasma zusammen und kann durch Zentrifugation getrennt werden. Hierbei trennt sich das Plasma von den Erythrozyten, die etwa 45 % des Vollblutes ausmachen, und von dem sogenannten Buffy Coat, der nur etwa 1 % ausmacht und aus Leukozyten sowie Thrombozyten besteht (siehe Abbildung 2.9).

Das Plasma selbst besteht hauptsächlich aus Wasser ( $\approx 91$  %). Zusätzlich enthält es etwa 7 % Proteine, deren größten Anteil die Albumine (60 %) ausmachen, gefolgt von den Globulinen. Im

Vollblut liegt Albumin nativ im Bereich zwischen 35–45  $\frac{g}{l}$  vor. Den kleinsten Bestandteil bilden niedermolekulare Substanzen wie Ionen (Bsp.:  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$ ), Lipide, Kohlenhydrate (Bsp.: Glukose) und Aminosäuren.

Die Erythrozyten bilden den größten zellulären Anteil des humanen Blutes und dienen dem Sauerstoff-Transport. Durch Diffusion gelangt der Sauerstoff aus den Alveolen in das Blut und wird dort an das in den Erythrozyten enthaltene Hämoglobin gebunden. Hämoglobin liegt nativ mit einer Konzentration von 120–180  $\frac{g}{l}$  im Vollblut vor. Es macht etwa 300–360  $\frac{g}{l}$  der Erythrozyten aus [23]. Die Kontaktdauer zwischen den Erythrozyten mit dem Alveolarraum beträgt nur etwa 0,75 s [64], im Falle von Radon nimmt die ICRP in den biokinetischen Modellen an, dass die Sättigung im Blut sofort erreicht wird [10].



**Abbildung 2.9.** Zusammensetzung des humanen Blutes

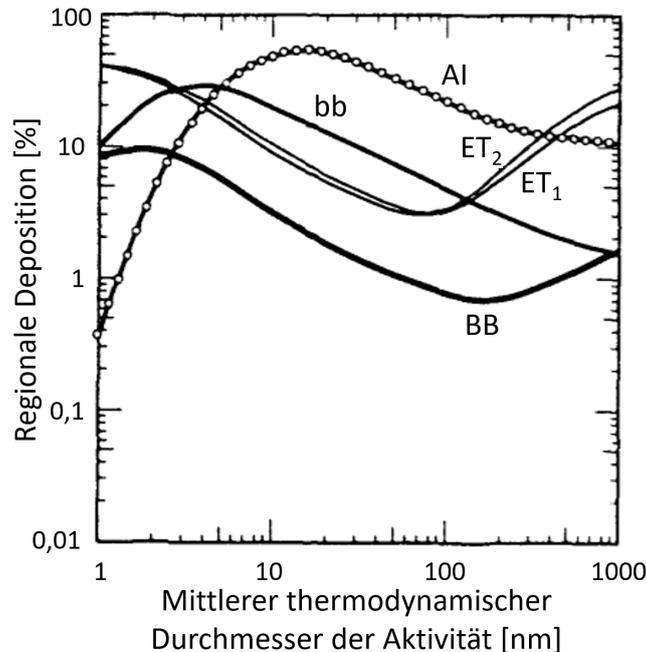
Welche Bestandteile des Blutes in welchem Maße die Löslichkeit von Radon beeinflussen, ist unbekannt, kann jedoch zu einem besseren Verständnis des Transports von Radon im Körper beitragen. Lediglich in Tierversuchen wurde die Menge an gelöstem Radon in dem Blut von Ratten [8] und Mäusen [9] bestimmt. Genauere Kenntnisse der Löslichkeit dienen nicht nur der Verbesserung der etablierten Modelle, sondern können eventuell zusätzlich Aufschluss darüber geben, welche zellulären Bestandteile zu einer Steigerung oder Verringerung der Löslichkeit führen.

### 2.5.2. Inkorporation der Zerfallsprodukte

Die Radon-Zerfallsprodukte, die über die Atmung inkorporiert werden, lagern aufgrund der Strömung und der auf sie wirkenden Kräfte im Respirationstrakt an. Aufgrund ihrer deutlich kürzeren Halbwertszeit im Vergleich zu Radon, zerfallen sie dort, bevor sie abtransportiert werden können [10]. Sie machen den größten Anteil an Zerfallsprodukten aus, der nach Inkorporation über die Atmung im Organismus verbleibt. Die Lungendosis trägt daher mit 95 % zur effektiven Dosis der Zerfallsprodukte bei. Da Radon nur in einem geringen Maße im Körper gelöst wird und dort zerfällt, machen die dabei entstehenden Zerfallsprodukte nur einen geringen Teil der effektiven Dosis aus.

Die Verteilung der Radon-Zerfallsprodukte innerhalb des Respirationstraktes ist inhomogen und wird insbesondere durch zwei Faktoren beeinflusst. Einerseits ist die Größe der Zerfallsprodukte relevant, da die Depositionsmechanismen (Impaktion, Sedimentation, Diffusion) abhängig von der Partikelgröße sind (siehe Kapitel 2.3.2). Andererseits wird dies zusätzlich durch die Geometrie

der Lunge beeinflusst, die sich durch Verzweigungen und Verengung der Durchmesser kennzeichnet. Wie in Abbildung 2.10 zu erkennen ist, sind die berechneten Depositionen innerhalb des HRTM der ICRP größenabhängig und inhomogen. Es wird hierbei zwischen den Regionen des extrathorakalen Bereichs (ET), des Bronchialbereichs (BB), des bronchiolären Bereichs (bb) und dem alveolar-interstitiellen Bereich (AI) unterschieden.



**Abbildung 2.10.** Größenabhängige regionale Partikeldeposition in unterschiedlichen Bereichen des Respirationstraktes (ET: extrathorakalen Bereich, BB: Bronchialbereich, bb: bronchiolären Bereich, AI: alveolar-interstitiellen Bereich), Grafik verändert nach [60]

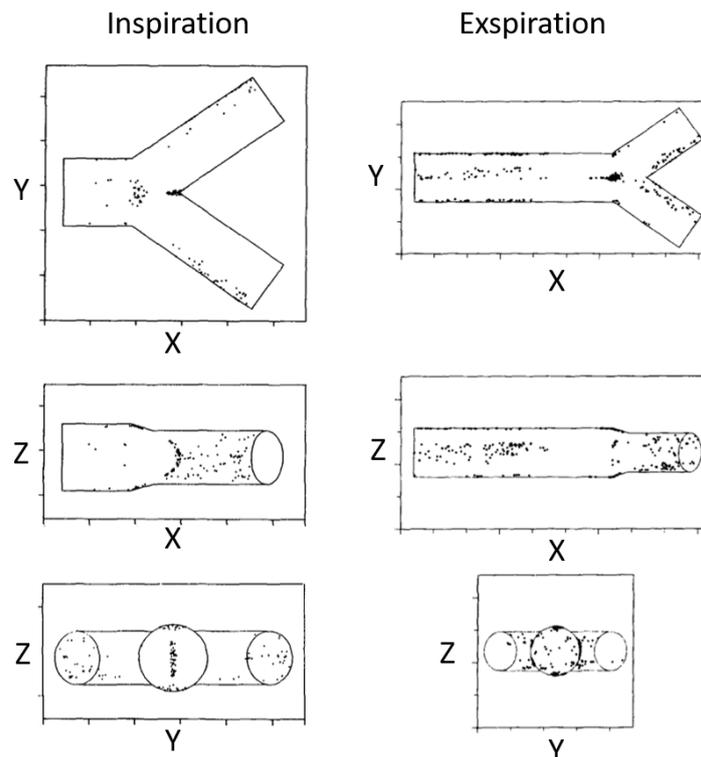
Weitere Berechnungen der ICRP zeigen, dass die effektive Dosis der freien Zerfallsprodukte ( $< 5$  nm) am höchsten ist und ein Minimum für Partikel im Größenbereich zwischen 100–1000 nm vorliegt (siehe Abbildung 2.7). Simulationen von Sturm zeigten, dass im Bereich zwischen 1–100 nm die Gesamtdeposition mit der Partikelgröße sinkt. Die Gesamtdeposition setzt sich dabei aus der Summe der Deposition in allen Bereichen zusammen. Die kleinsten Partikel ( $d = 1$  nm) heften laut Simulationen zu 93,7% an, wohingegen nur 23,9% der Partikel einer Größe von 100 nm haften verbleiben [65].

Die orts aufgelöste Simulation der Partikeldeposition innerhalb eines Modells beginnend mit der Trachea zeigte zusätzlich, dass insbesondere kleinste Partikel (1 nm) im Größenbereich der freien Zerfallsprodukte in den oberen Bereiche der Atemwege (Trachea, 1. + 2. Generation) anlagern. Mit einem Anstieg der Partikelgröße verschiebt sich dies weiter in die Peripherie der Lunge. Partikel einer Größe von 10 nm zeigen die größte Deposition im bronchiolären und alveolar-interstitiellen Bereich. Noch größere Partikel im Größenbereich der angelagerten Zerfallsprodukte mit 100 nm Größe werden hauptsächlich im AI-Bereich deponiert [65, 66]. Der Vergleich mehrerer Modelle zur Bestimmung der Lungendosis und Unterscheidung zwischen freien und angelagerten Zerfallsprodukten zeigt konsistent, dass der hauptsächliche Teil der freien Zerfallsprodukte im Bronchialbereich anlagert ( $> 75\%$ ) und die Ablagerung im AI-Bereich vernachlässigbar gering ist ( $\leq 0,01\%$ ) [67].

Die Deposition der Zerfallsprodukte ist allerdings nicht nur in den verschiedenen Regionen des Respirationstraktes unterschiedlich, sondern auch innerhalb dieser Bereiche kommt es in den Bifurkationen zu einer Hotspot-Bildung [12, 13, 68, 69]. Die Zellen in der Bifurkation erhalten somit eine deutlich höhere Dosis als andere, die laut Simulationen um bis zu zwei Größenordnungen größer sein kann [70]. Die Differenzierung zwischen freien und angelagerten Zerfallsprodukten bei gleichen Atemparametern zeigt den gleichen Trend. In beiden Größenfraktionen ist der größte Teil der Ablagerung in der Bifurkation. Absolut betrachtet, ist der Anteil freier Zerfallsprodukte, die in Bifurkationen deponieren, mit 10,7 % deutlich größer, als der der angelagerten Zerfallsprodukte (2,6 %) [12].

Da der dominierende Ablagerungsmechanismus der freien Zerfallsprodukte die stochastische Brown'schen Teilchenbewegung ist (siehe Kapitel 2.3.2), führt dies dazu, dass auch das Depositionsmuster bei gleichen Simulationsbedingungen eine gewisse Variabilität zeigt. Die Ansammlung an Bifurkationen bleibt jedoch existent [12].

Neben geometrischen Eigenschaften der Partikel und des Respirationstraktes, muss der Atemzyklus, der den Luftfluss bestimmt, ebenfalls berücksichtigt werden. Durch den Wechsel aus Ein- und Ausatmung kommt es periodisch zur Umkehr des Luftstroms und zusätzlich zu einem Stillstand der Luft in den Phasen des Wechsels. Abbildung 2.11 zeigt, dass dies zu unterschiedlichen Depositionsmustern führt, die bei der Risikobewertung berücksichtigt werden müssen [68, 71].



**Abbildung 2.11.** Simulation der Partikeldeposition in einer Bifurkation für Partikel mit einem Durchmesser von  $d = 10 \text{ nm}$  und einer Luftdurchfluss von  $4 \frac{\text{l}}{\text{min}}$ , Grafik verändert nach [68, 71]

Um die Ablagerung von Partikeln im Respirationstrakt zu verhindern, existieren im menschlichen Organismus verschiedene Mechanismen, um diese zu filtern und abzutransportieren. Die erste Filterung grober Partikel findet bereits im Naseneingangsbereich statt. Darauf folgend wird in

der Nasenhöhle die laminare Atemluft aufgrund der Geometrie in eine turbulente Strömung überführt, um so den Kontakt zwischen der Atemluft und Schleimhaut zu verbessern und Partikel filtern zu können. Zur Abwehr von Bakterien und Viren, die mit den Schleimhäuten in Kontakt kommen, dienen Lymphozyten, Makrophagen und Plasmazellen in der Nase [59]. Diese erste mechanische Filterung entspricht der Deposition von Partikeln im extrathorakalen Bereich (siehe Abbildung 2.10).

Wenn Partikel dennoch die Atemwege erreichen, können diese durch mukozilliären Transport aus der Lunge entfernt werden. Hierfür sezernieren Becherzellen und subepitheliale Drüsenzellen eine Schleimschicht, den sogenannten Mukus, der das Innere der Lunge bedeckt. Partikel, die mit dem Mukus in Kontakt kommen, bleiben daran haften und werden mit Hilfe der Zilien des Respirationsepithels durch eine gerichtete rhythmische Bewegung in den Rachen abtransportiert und anschließend verschluckt [23]. Auch Radon-Zerfallsprodukte können bereits vor Zerfall durch diesen Mechanismus aus der Lunge abtransportiert werden, wobei dieser Prozess dann zu einer Reduktion der Dosis führen kann. Hierbei ist allerdings anzumerken, dass der mukozilliäre Transport in den Bifurkationen verlangsamt ist [66]. Die Region der höchsten Ablagerung hat also gleichzeitig die langsamsten Abtransportraten.

Zusammenfassend sind folgende Punkte bei der Lungendosimetrie durch Radon-Zerfallsprodukte zu berücksichtigen:

- Inhomogene Verteilung in den Abschnitten des Respirationstraktes
- Ausgeprägtere Anlagerung der freien Zerfallsprodukte im Vergleich zu größeren Zerfallsprodukten
- Hotspot Regionen an den Bifurkationen
- Verlangsamte mukozilliäre Reinigung innerhalb von Bifurkationen

Die beschriebenen Phänomene zeigen, wie wichtig detaillierte Kenntnisse der Deposition insbesondere der freien Zerfallsprodukte sind, um eine zuverlässige Bestimmung der Dosis nach Exposition mit Radon-Zerfallsprodukten zu ermöglichen.

## 3. Material und Methoden

### 3.1. Expositionssystem Radonkammer

Die Experimente wurden in einer bereits bestehenden Radonkammer [72] durchgeführt (siehe Abbildung 3.1).



**Abbildung 3.1.** Expositionssystem Radonkammer; 1. Radium-Quelle, 2. Aktivkohlefilter, 3. Beatmungsbeutel in radondichtem Beutel, 4. Beatmungsgerät, 5. Aerosolgenerator, 6. Edelstahlfass, 7. Wasserbad, 8. Messgerät zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration und der Zerfallsprodukte

Diese besteht aus einem Edelstahlfass (50l) in einem Wasserbad, das die Temperatureinstellung ermöglicht. Zusätzlich können die Luftfeuchtigkeit, die  $\text{CO}_2$ -Konzentration und mit Hilfe eines Ventilators mit einem Volumenstrom von  $V = 60 \frac{\text{l}}{\text{min}}$  (F30LM012GK-9, Micronel AG, Tagelswangen, Deutschland) die Ventilation in der Kammer reguliert werden.

Zur Erzeugung von Radon wird eine Radon-Quelle mit einer Aktivität der Quelle von etwa  $40 \text{ kBq/m}^3$  genutzt, die das Mutternuklid Radium ( $^{226}\text{Ra}$ ) enthält (RN-1025, Pylon Electronics, Ottawa, Kanada). Mit einer definierten Luftmenge (11) wird Radon aus der Quelle in die Ra-

donkammer gespült, wobei die Radon-Zerfallsprodukte durch einen Filter im Inneren der Quelle zurückgehalten werden. Das Zeitintervall zwischen zwei Spülvorgängen der Quelle mit Luft bestimmt die Radonaktivität und kann mit folgender Gleichung abgeschätzt werden [73]:

$$A(^{222}\text{Rn}) = A(^{226}\text{Ra})(1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}} \cdot t}) \quad (3.1)$$

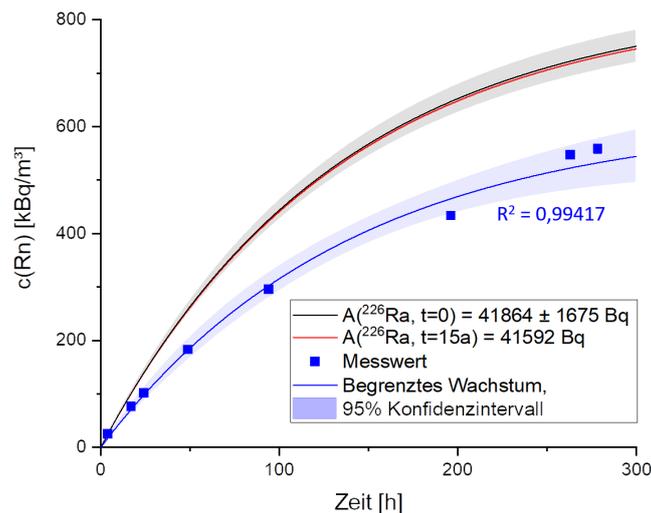
wobei:

- $A(^{222}\text{Rn})$  = Radonaktivität [Bq]
- $A(^{226}\text{Ra})$  = Aktivität der Quelle [Bq] =  $41864 \pm 1675$  Bq
- $\lambda_{\text{Rn}}$  = Zerfallskonstante  $^{222}\text{Rn} = 2,097 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$
- $t$  = Zeit in Sekunden zwischen dem Spülen der Quelle

Die theoretische Radonaktivitätskonzentration ( $c(\text{Rn})$ ) in der Kammer kann anschließend durch Normierung auf das Kammervolumen ( $V_{\text{Kammer}}$ ) bestimmt werden:

$$c(\text{Rn}) = \frac{A(^{222}\text{Rn})}{V_{\text{Kammer}}} = \frac{A(^{222}\text{Rn})}{0,05 \text{ m}^3} \quad (3.2)$$

Die Annahme, dass die Aktivität der Quelle konstant bleibt, ist aufgrund der langen Halbwertszeit von  $^{226}\text{Ra}$  ( $t_{\frac{1}{2}} = 1600 \text{ a}$ ) gerechtfertigt. Seit Kalibrierung der Quelle (20.09.2012) bis zum letzten Experiment dieser Arbeit ist die Abnahme der Aktivität geringer als 0,7%. Im Vergleich dazu liegt der Messfehler der Kalibrierung bei 4% und übersteigt die Abnahme der Aktivität durch radioaktiven Zerfall somit deutlich. Ein grafischer Vergleich zwischen der Aktivität zum Zeitpunkt der Kalibrierung ( $A(^{226}\text{Ra}, t=0) = 4184 \pm 1675 \text{ Bq}$ ) mit der berechneten Aktivität 15 Jahre später ( $A(^{226}\text{Ra}, t=15\text{a}) = 41592 \text{ Bq}$ ) verdeutlicht, dass diese Unterschiede nicht signifikant sind (siehe Abbildung 3.2). Zur Abschätzung der Aktivitätskonzentration kann daher die vereinfachte Formel genutzt werden.



**Abbildung 3.2.** Anstieg der theoretischen (schwarz: Verringerung der Aktivität der Quelle nicht berücksichtigt, rot: Verringerung der Aktivität der Quelle berücksichtigt) und experimentell bestimmten (blau) Radonaktivitätskonzentration in der Kammer über die Zeit zwischen dem Spülen (T:  $22,5 \pm 0,5 \text{ }^\circ\text{C}$ , rH:  $47,8 \pm 2,1 \text{ \%}$ )

Diese theoretische Aktivitätskonzentration konnte im Experiment jedoch nicht erreicht werden, da es zu einem Verdünnungseffekt kommt und zusätzlich nicht die gesamte Menge des Radons aus der Quelle gespült werden kann [74]. Um die zu erwartenden Aktivitätskonzentrationen trotzdem abschätzen zu können, wurde diese nach unterschiedlicher Dauer der Quellaufsättigung gemessen und die Daten gefittet. Der aus den experimentellen Daten bestimmte Zusammenhang wird dann dazu genutzt, um die Dauer der Quellaufsättigung für die benötigte Radonaktivitätskonzentration zu bestimmen.

$$c(Rn) = 616.000 Bq/m^3 \cdot (1 - e^{-1,994 \cdot 10^{-6} \frac{1}{s} \cdot t}) \quad (3.3)$$

Die Berechnung nach Formel 3.3 ermöglicht durch Vergleich der Werte ebenfalls die Identifikation fehlerhafter Messungen der Radonaktivitätskonzentration. Dieses Vorgehen wurde genutzt, um zu überprüfen, ob das genutzte Messgerät auch bei höheren Temperaturen ( $T > 23 \text{ }^\circ\text{C}$ ) oder höherer relativen Luftfeuchtigkeiten ( $rH > 60 \%$ ) korrekte Messdaten liefern kann.

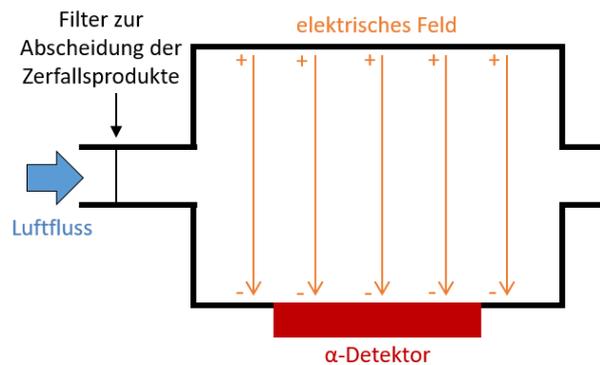
## 3.2. Messung von Radon und alpha-strahlenden Zerfallsprodukten

Wie im vorangegangenen Kapitel bereits erwähnt, wurde die Radonaktivitätskonzentration in der Radonkammer gemessen, zusätzlich wurde die Equilibrium Equivalent Concentration (EEC) der alpha-strahlenden Zerfallsprodukte ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ) bestimmt. Hierfür wurde der kommerziell erhältliche Radon- und Folgeproduktmonitor EQF 3220 (SARAD GmbH, Dresden, Deutschland) inklusive der dazugehörigen Software (dVision) genutzt, der die simultane Messung ermöglicht. Die Messprinzipien werden im Folgenden separat betrachtet.

### 3.2.1. Radonmessung

Um die Radonaktivitätskonzentration zu bestimmen, wird nicht der Zerfall des Radons detektiert, sondern die Messung erfolgt indirekt durch Detektion der kurzlebigen alpha-strahlenden Folgeprodukte ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ). Es wird hierfür Luft in eine Messkammer im Inneren des Gerätes gepumpt, wobei die Folgeprodukte durch ein Filtersystem zurückgehalten werden. Zerfällt Radon in dieser Messkammer, werden die entstehenden positiv geladenen Polonium-218 Atome durch ein angelegtes elektrisches Feld auf der Oberfläche eines Alpha-Detektors abgeschieden und detektiert (siehe Abbildung 3.3). Das durch weiteren Zerfall (siehe Abbildung 2.4) entstehende alpha-strahlende  $^{214}\text{Po}$  wird ebenfalls detektiert und die beiden Nuklide werden anhand ihrer spezifischen Zerfallsenergien mit zwei unterschiedlichen Peaks spektroskopisch getrennt. Die Zerfälle sind proportional zur Radonaktivitätskonzentration, welche daraus berechnet werden kann [75]. Werden beide Nuklide zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration genutzt, dauert es etwa 3 h, bis diese den korrekten Wert darstellen, da erst dann das radioaktive Gleichgewicht erreicht ist. Zusätzlich kann der sogenannte „Fast-Mode“ genutzt werden, die Radonaktivitätskonzentration wird dann nur aus den Daten des Polonium-218 berechnet. In den durchgeführten Experimenten wurden die Daten des Fast-Mode genutzt.

Die spektroskopische Auflösung ermöglicht zusätzlich die simultane Bestimmung der Thoronaktivitätskonzentration durch die Messung der Thoron-Zerfallsprodukte ( $^{216}\text{Po}$ ,  $^{212}\text{Po}$ ). In den durchgeführten Experimenten wird ausschließlich  $^{222}\text{Rn}$  genutzt, somit können die Daten für Thoron und seine Zerfallsprodukte vernachlässigt werden.



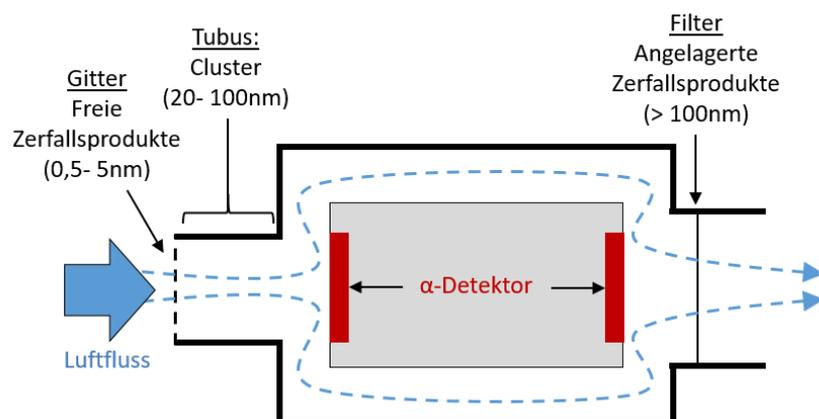
**Abbildung 3.3.** Schemazeichnung der Messkammer zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration

### 3.2.2. Messung der Radon-Zerfallsprodukte

Zur Bestimmung der EEC der Zerfallsprodukte befindet sich ein separater Detektorkopf an dem Messgerät, der sich vor der Messkammer zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration befindet und in der Radonkammer platziert wird. Dessen wichtigste Komponenten sind zwei Alpha-Detektoren, ein Edelstahl-Gitter und ein Filter (siehe Abbildung 3.4). Zusätzlich ist es entscheidend, dass ein definierter Luftstrom durch das Gerät gepumpt wird.

Die Zerfallsprodukte werden dann abhängig von ihrer Größe an unterschiedlichen Positionen des Detektorkopfes abgeschieden und detektiert, wobei zwischen drei verschiedenen Größenfraktionen unterschieden werden kann:

- Freie Zerfallsprodukte:  $< 5 \text{ nm}$   $\rightarrow$  Gitter
- Cluster:  $20\text{--}100 \text{ nm}$   $\rightarrow$  Tubus
- Angelagerte Zerfallsprodukte:  $> 100 \text{ nm}$   $\rightarrow$  Filter



**Abbildung 3.4.** Schemazeichnung des Detektorkopfes zur größenabhängigen Bestimmung der EEC der Radon-Zerfallsprodukte

Die Maschenweite des Gitters am Lufteinlass des Detektorkopfes in Kombination mit der Durchströmungsgeschwindigkeit sind vom Hersteller so gewählt, dass die freien Zerfallsprodukte vollständig daran abgeschieden werden und die nächstgrößere Fraktion der Cluster dahinter an der

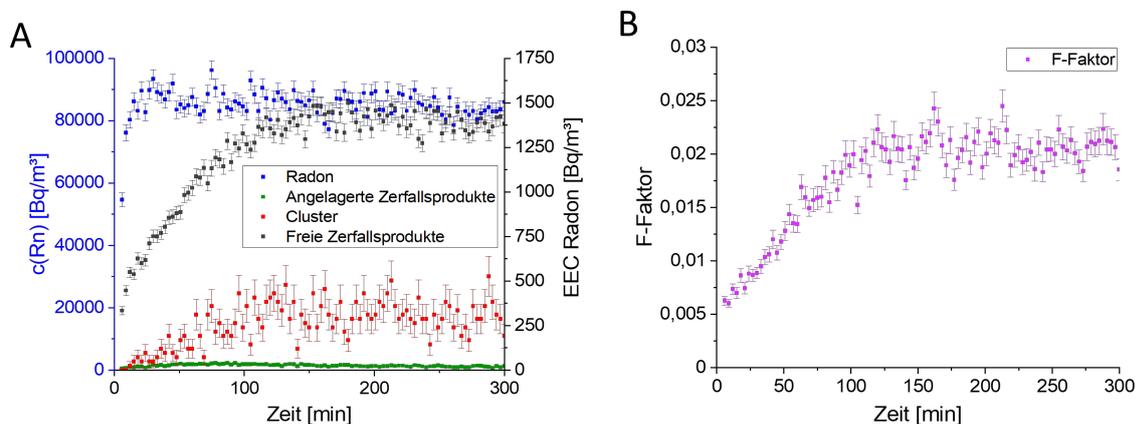
Innenwand des Tubus zurückbleibt (siehe Abbildung 3.4). Beide Größenfraktionen werden mit dem gleichen Alpha-Detektor gemessen, wobei analog zur Messung der Radonaktivitätskonzentration  $^{218}\text{Po}$  und  $^{214}\text{Po}$  detektiert werden. Je nach Ort der Anlagerung und somit auch dem Ort des Zerfalls legen die entstehenden Alpha-Teilchen unterschiedliche Strecken bis zum Auftreffen am Detektor zurück. Die entstehenden Peaks der weiter entfernt zerfallenden freien Zerfallsprodukte liegen energetisch unterhalb der Peaks der Cluster und eine spektroskopische Trennung der beiden Fraktionen wird ermöglicht.

Die Durchströmungsgeschwindigkeit, die dem Luftfluss durch das Gerät entspricht, wird während eines Experiments konstant gehalten und geräteintern gemessen. Nur bei der vom Hersteller vorgegebenen Durchflussrate ist die Abscheidecharakteristik der freien Zerfallsprodukte und Cluster gewährleistet. Eine Veränderung des Luftflusses würde dazu führen, dass die beiden Größenfraktionen auch an anderen Positionen im Messgerät anheften und die berechneten EEC, die das Gerät ausgibt, fehlerhaft wären.

Die angelagerten Zerfallsprodukte werden mit dem Luftstrom weiter durch den Detektorkopf transportiert und auf einem Membranfilter mit  $1\ \mu\text{m}$  Porengröße [76] abgeschieden. Ein separater Alpha-Detektor bestimmt dann deren Aktivität.

### 3.2.3. Darstellung der Daten

Das Messgerät ermöglicht die simultane Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration und der EEC der Radon-Zerfallsprodukte. Exemplarisch ist eine Messung der verschiedenen Größen (Radonaktivitätskonzentration, freie Zerfallsprodukte, Cluster, angelagerte Zerfallsprodukte) in der Radonkammer (siehe Abbildung 3.5 A) und der nach Formel 2.33 berechnete F-Faktor (siehe Abbildung 3.5 B) gezeigt:



**Abbildung 3.5.** A: Charakteristischer Verlauf der Radonaktivitätskonzentration (blau) und der verschiedenen Größenfraktionen (schwarz: freie Zerfallsprodukte, rot: Cluster, grün: angelagerte Zerfallsprodukte), Messfehler der angelagerten Zerfallsprodukte sind so gering, dass diese hier nicht sichtbar sind, B: Charakteristischer Verlauf des F-Faktors (T:  $22,2 \pm 0,1^\circ\text{C}$ , rH:  $34,3 \pm 3,6\%$ )

Abbildung 3.5 A zeigt, dass die Radonaktivitätskonzentration (blau) über den beobachteten Zeitraum nahezu konstant ist und nicht stärker abnimmt, als dies durch den radioaktiven Zerfall des Radons zu erwarten wäre.

Zusätzlich wird deutlich, dass die freien Zerfallsprodukte (schwarz) den größten Anteil an den Radon-Zerfallsprodukten ausmachen. Sie steigen bis etwa  $t = 120$  min an und bleiben danach auf einem annähernd konstanten Wert. Analog dazu verhalten sich die Cluster (rot), wobei diese Größenfraktion um etwa den Faktor 4 geringer ist.

Der Verlauf der angelagerten Zerfallsprodukte wird hier zwar gezeigt, ist allerdings nicht repräsentativ für andere Experimente. Trotz gleicher Expositionsbedingungen in der Radonkammer (T, rH,  $c(\text{Rn})$ ) konnten signifikante Unterschiede der EEC der angelagerten Zerfallsprodukte gemessen werden, wobei auch der zeitliche Verlauf variierte. In diesem Beispiel ist die EEC der angelagerten Zerfallsprodukte um etwa den Faktor 60 geringer als die freien Zerfallsprodukte. Dieses Verhältnis war aufgrund der Variation der angelagerten Zerfallsprodukte je nach Experiment unterschiedlich. Ohne die Nutzung des Aerosolgenerators waren sie immer die Größenfraktion, die am wenigsten in der Radonkammer vorhanden war.

Der F-Faktor zeigt einen ähnlichen Verlauf wie die freien Zerfallsprodukte (siehe Abbildung 3.5 B), da diese den größten Anteil der Zerfallsprodukte in der Radonkammer ausmachen und diesen dementsprechend am stärksten beeinflussen (siehe Formel 2.33).

Zur Charakterisierung der Radonkammer und des Aerosolgenerators wurde der Detektorkopf ohne weitere Modifikationen in der Radonkammer platziert und ein Messintervall von 3 min ausgewählt.

### 3.3. Charakterisierung der Radonkammer

Wie in den vorhergehenden Kapiteln beschrieben, können verschiedene Bedingungen in der Radonkammer variiert werden und deren Einfluss auf die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte soll experimentell bestimmt werden. Indem jeweils nur einer dieser Parameter variiert und die anderen konstant gewählt werden, können gemessene Veränderungen der Größenverteilung dem veränderten Expositionsparameter eindeutig zugeordnet werden.

Hierfür wurden folgende Grundeinstellungen genutzt und die jeweilige Größe im beschriebenen Maße variiert:

- Radonaktivitätskonzentration
  - Grundeinstellung:  $\approx 95 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$
  - Variation:  $95\text{--}530 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$
- Ventilation
  - Grundeinstellung: keine Ventilation
  - Variation:
    1. Ventilation nach 180 min einschalten
    2. Ventilation von Beginn ( $t = 0$  min) eingeschaltet
- Räumliche Verteilung  $\rightarrow$  Position Detektorkopf
  - Grundeinstellung: Mittig mit geringem Abstand zum Boden der Kammer
  - Variation:
    1. Abstand des Detektorkopfes zum Boden der Radonkammer
    2. Abstand des Detektorkopfes zum Kammerrand

- Relative Luftfeuchtigkeit
  - Grundeinstellung:  $\approx 50\%$
  - Variation: 20–76%
- Temperatur
  - Grundeinstellung:  $\approx 22^\circ\text{C}$
  - Variation: 22–37°C

Wenn nicht anders beschrieben, wurden jeweils die Grundeinstellungen für die Experimente zur Charakterisierung der Radonkammer genutzt.

#### 3.4. Aerosolgenerator

Um den Anteil der freien Zerfallsprodukte in der Radonkammer zu steigern, wurde ein Aerosolgenerator (WO<sub>x</sub>-Generator Modell 7.860, Grimm Aerosol Technik Ainring GmbH, Ainring, Deutschland) zur Erzeugung von Nanopartikeln angeschafft. Die erzeugten Primärpartikel haben laut Herstellerangaben eine Größe von etwa 1,2 nm und entstehen durch das Erhitzen von metallischem Wolfram, das anschließend mit trockener Luft zu Wolframoxiden reagiert.

Hierfür befindet sich im Inneren des Geräts ein beheizbares Keramikrohr, in dem eine 8–10 mm lange Wolframdrahtwendel positioniert und mit Luft durchströmt wird. Die dabei entstehenden Primärpartikel werden während des Betriebs mit Hilfe verschiedener Luftströme aus dem Gerät geleitet, wobei die Größenverteilung und auch die Partikelkonzentration mit Hilfe der Heizspannung und verschiedener Volumenströme ( $Q$ ) beeinflusst werden kann:

- Wolfram-Luft ( $Q_{\text{WO}_x}$ ):  $1,6\text{--}16 \frac{\text{l}}{\text{h}} \rightarrow 0,03\text{--}0,27 \frac{\text{l}}{\text{min}}$
- Träger-Luft ( $Q_{\text{Träger}}$ ):  $50\text{--}500 \frac{\text{l}}{\text{h}} \rightarrow 0,83\text{--}8,33 \frac{\text{l}}{\text{min}}$
- Verdünnungsluft ( $Q_{\text{Dil}}$ ):  $180\text{--}1800 \frac{\text{l}}{\text{h}} \rightarrow 3\text{--}30 \frac{\text{l}}{\text{min}}$

Durch Agglomerationsprozesse können die entstehenden Partikel laut Herstellerangaben bis auf etwa 20 nm anwachsen und das erzeugte Aerosol liegt in einem Größenbereich von 1,2–20 nm. Um diese Agglomeration der Partikel zu verringern, ist es notwendig, den Wolframpartikel-Luftstrom ( $Q_{\text{WO}_x}$ ) zu verdünnen, was mit Hilfe der Träger-Luft ( $Q_{\text{Träger}}$ ) erfolgt. Sollten geringere Partikelkonzentrationen benötigt werden, kann dies durch die Erhöhung der Verdünnungsluft ( $Q_{\text{Dil}}$ ) umgesetzt werden.

Laut Hersteller sollte zur Erzeugung kleiner Partikel die Heizleistung gering gewählt werden, während  $Q_{\text{WO}_x}$  und  $Q_{\text{Träger}}$  groß gewählt werden sollten [77].

Zusätzlich ist darauf zu achten, dass der Wolframdraht durch die Experimente verbraucht wird und erneuert werden muss, um die Generierung von Partikeln gewährleisten zu können.

Um das Anwachsen der Partikel durch Agglomeration in den Schläuchen zu minimieren, wurde der Aerosolgenerator neben der Radonkammer platziert und mit einem möglichst kurzen Schlauch angeschlossen ( $l = 71 \pm 1 \text{ cm}$ ). Hierbei ist festzuhalten, dass sich während des Einleitens von Aerosol kein Druck in der Kammer aufbaut, da diese zum Filter hin geöffnet ist.

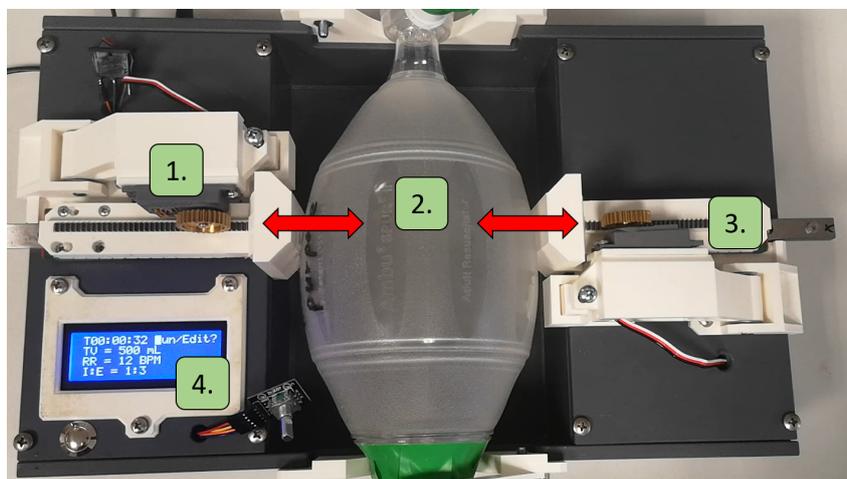
Für ein Experiment mit Nutzung des Aerosolgenerators wurde zunächst Aerosol in die Kammer eingeleitet und erst anschließend Radon, da das Einleiten von Radon nur etwa 12 s dauert, während je nach Experiment der Aerosolgenerator für bis zu 30 min in Betrieb war. Während des Einleitens des Aerosols würde bei anderer Reihenfolge die Radonaktivitätskonzentration deutlich absinken und teilweise Werte unterhalb der Nachweisgrenze erreichen. Bei dem geringsten

getesteten Luftdurchfluss von  $3,42 \frac{l}{min}$  würde bereits nach weniger als 15 min mehr Luft neu in die Kammer gespült werden, als diese an Volumen (50 l) fasst. Das Radon wird lediglich durch 1 l Luft in die Kammer eingeleitet und sollte dementsprechend die Aerosolverteilung geringer beeinflussen.

## 3.5. Lungenmodell

Mit dem Ziel experimentelle Daten über die Deposition von Radon-Zerfallsprodukten in der humanen Lunge gewinnen zu können, wurde ein Modellsystem zur Abbildung des Respirationstraktes entwickelt. Dies besteht zum einen aus einer idealisierten Geometrie der humanen Atemwege, wobei der Fokus auf der Trachea und der ersten Bifurkation lag. Zum anderen wurde ein Beatmungsgerät genutzt, um den Atemzyklus des Menschen darstellen zu können. Zur Durchführung der Experimente wurde das geometrische Modell der Atemwege in der Radonkammer platziert und Luft in wechselnder Flussrichtung durch das Modell geleitet.

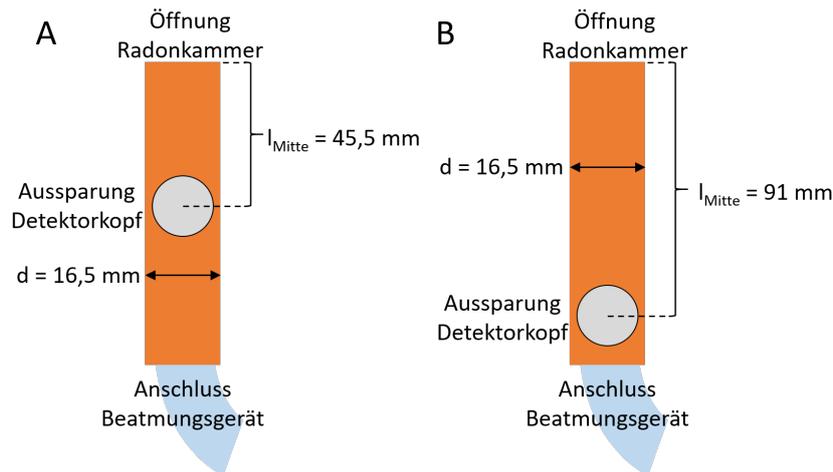
Der Luftfluss durch das Modell simuliert den humanen Atemzyklus mit den beiden sich abwechselnden Phasen der Inspiration und Expiration und dem damit verbundenen Richtungswechsel des Luftstroms. Ein Beatmungsbeutel wird von zwei Kompressionsarmen kontrolliert eingedrückt, wobei das Ausmaß der Kompression und der dadurch erzeugte Luftstrom durch zwei Servomotoren gesteuert wird (siehe Abbildung 3.6). Die unterschiedlich starke Auslenkung der beiden Kompressionsarme ermöglicht die Regelung des Luftvolumens, wobei das Volumen in 50 ml Schritten in einem Bereich von 300–600 ml eingestellt werden kann. Zusätzlich ist es möglich, durch die Frequenz der Kompression verschiedene Atemfrequenzen in einem Bereich zwischen 5–30 Atemzügen pro Minute zu simulieren [78].



**Abbildung 3.6.** Beatmungsgerät; 1. Servomotor, 2. Beatmungsbeutel, 3. Kompressionsarm, 4. Display zur Einstellung der Beatmungsparameter, rote Pfeile zeigen Bewegung der Drücker zur Kompression des Beutels

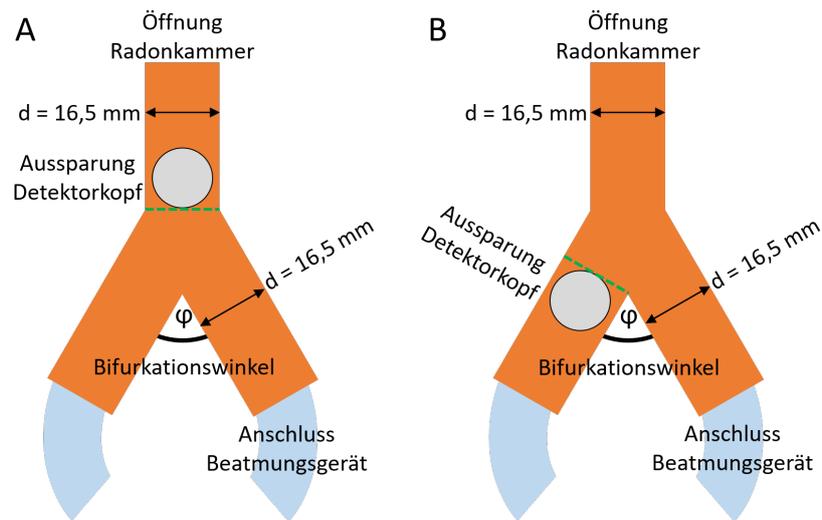
Basierend auf dem im Strahlenschutz genutzten Modell der Atemwege [60] wurde ein Modell der Trachea und der 1. Bifurkation der Lunge erstellt. Hierfür wurde mit Hilfe eines CAD-Programms (FreeCAD) die jeweilige Geometrie erstellt und anschließend aus Polyactiden (Polylactic Acid (PLA)) bestehendem Material 3D gedruckt.

Es wurde ein Modell des geraden Bereichs der Trachea erstellt und daraus zwei Modelle mit unterschiedlicher Position für den Detektorkopf gedruckt. Die Aussparung für den Detektorkopf befindet sich hierbei entweder 45,5 mm oder 91 mm von dem Beginn des Modells entfernt (siehe Abbildung 3.7). Der Beginn des Modells ist als die Seite festgelegt, die zur Radonkammer hin geöffnet ist, das Ende des Modells ist durch einen Schlauch an das Beatmungsgerät angeschlossen. Der Durchmesser wurde konstant gewählt und dem Durchmesser der Trachea des HRTM der ICRP angepasst ( $d = 16,5 \pm 0,1 \text{ mm}$ ) [60].



**Abbildung 3.7.** Schemazeichnung des Trachea-Modells zur Messung in der Mitte der Trachea (A) und am Ende der Trachea (B)

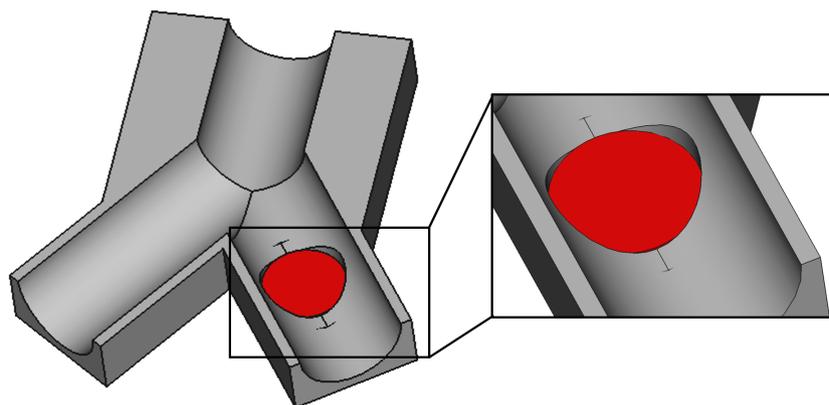
Zusätzlich wurden zwei Bifurkationsmodelle mit einem Bifurkationswinkel von  $70^\circ$  und  $180^\circ$  entwickelt und auch daraus je zwei Modelle mit unterschiedlicher Position der Aussparung für den Detektorkopf gedruckt. Hierbei wurde die Aussparung entweder direkt vor dem Beginn der Bifurkation oder direkt dahinter positioniert. Als Beginn der Bifurkation wurde der Ort festgelegt, an dem die beiden Tochterzweige aus dem Mutterzweig hervorgehen. Die Position nach der Bifurkation wurde orthogonal zum Tochterzweig an dem Ort gewählt, an dem sich beide Tochterzweige trennen (siehe Abbildung 3.8). Die Durchmesser wurden dem Trachea-Modell angepasst, um die Vergleichbarkeit zu verbessern. Im Folgenden ist exemplarisch das Modell mit einem Bifurkationswinkel von  $70^\circ$  gezeigt. Eine Skizze des Modells mit einem Winkel von  $180^\circ$  ist in Abbildung A.3 dargestellt.



**Abbildung 3.8.** Schemazeichnung der Bifurkationsmodelle zur Messung vor der Bifurkation (A) und nach der Bifurkation (B) bei einem Bifurkationswinkel  $\varphi = 70^\circ$ ; grüne Linie entspricht Orthogonaler zur Abgrenzung der Bifurkation

Die Aussparung für den Detektorkopf wurde mit dem Ziel konstruiert, den Luftfluss durch das Modell minimal zu beeinflussen. Gleichzeitig muss allerdings auch beachtet werden, dass die Messung der Zerfallsprodukte nicht beeinflusst wird. Hierfür ist es notwendig, dass der Gitterbereich des Detektorkopfes nicht durch Teile des Modells bedeckt ist, denn sonst würde der geräteinterne Luftfluss verändert und dadurch die Abscheidecharakteristik der Zerfallsprodukte beeinflusst werden (siehe Kapitel 3.2).

Um beides zu kombinieren, wurde der Detektorkopf, wie in Abbildung 3.9 gezeigt, am Modell angesetzt. Der Messkopf ragt hierbei nicht ins Innere des Modells und der gesamte Gitterbereich liegt frei.



**Abbildung 3.9.** Schemazeichnung der Positionierung der Detektorkopfes (rot) am Modell (grau)

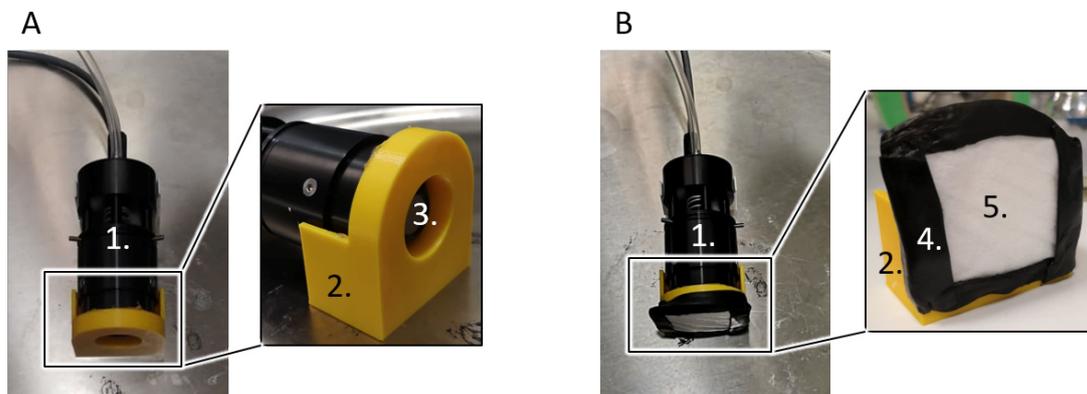
### 3.6. Filterung von Radon-Zerfallsprodukten durch Gesichtsmasken

Während der COVID-19-Pandemie gehörte das Tragen von Gesichtsmasken zum Alltag und es drängte sich die Frage auf, ob diese in der Lage sind, die Strahlenbelastung bei einer Exposition von Radon zu verringern. Um dies bewerten zu können, sollte die Filtereffizienz von FFP2 Masken und II R/OP-Masken getestet werden. Dafür wurden folgende Masken ausgewählt:

- FFP2 Maske mit CE Zertifizierung 224-21-01-R02 (IPOS-Medikal, Diş Ticaret A. Ş, Istanbul, Turkey) - 5-lagige Maske ( $d=0,9 \pm 0,1$  mm), Teststandard: EN 149:2001 + A1:2009
- II R/OP-Maske (IPOS-Medikal, Diş Ticaret A. Ş, Istanbul, Turkey) - 3-lagige Maske ( $d=0,5 \pm 0,1$  mm), Teststandard: DIN EN 14683:2019-10

Zur Bestimmung der Radonaktivitätskonzentration und der EEC der Radon-Zerfallsprodukte wurde das in Kapitel 3.2 beschriebene Messgerät genutzt und mittig in der Radonkammer auf einer Halterung positioniert (siehe Abbildung 3.10 A). Die typische Experimentdauer betrug 5 h und es wurden die Messwerte im Zeitraum 3 h bis maximal 5 h nach Einleiten von Radon ausgewertet.

Um die Filtereffizienz der Masken zu bestimmen, wurden zuerst Hintergrundmessungen ohne Maske durchgeführt. Dafür wurde der Detektorkopf auf einer Halterung positioniert und die Kontaktfläche mit Schliff fett abgedichtet (siehe Abbildung 3.10 A). Radon wurde in die Kammer eingeleitet und die Radonaktivitätskonzentration sowie die EEC der Radon-Zerfallsprodukte gemessen. Anschließend wurden analoge Experimente mit Maske durchgeführt, wobei ein Ausschnitt des jeweiligen Maskentyps ( $4,5 \times 4,5$  cm) mit Butyl-Kautschuk an der Halterung befestigt wurde (siehe Abbildung 3.10 B). Dadurch wurde sichergestellt, dass die Luft, die in das Messgerät gepumpt wird, die Maske durchströmt.



**Abbildung 3.10.** Aufbau zur Bestimmung der Filtereffizienz von Radon und Zerfallsprodukten durch Gesichtsmasken, A: Hintergrundmessung, B: Messung mit Maske; 1. Detektorkopf in der Radonkammer, 2. Halterung, 3. Gitter zur Abscheidung der freien Zerfallsprodukte, 4. Butyl-Kautschuk zur Abdichtung, 5. FFP2 Maske

Die Filtereffizienz des jeweiligen Maskentyps wird dann durch die Differenz zwischen Hintergrundmessung und Maskenmessung bestimmt. Eine detaillierte Beschreibung der Messmethode kann in [79] nachgelesen werden.

### 3.7. Löslichkeit

Die Radon-Löslichkeit spielt, wie in Kapitel 2.2.2 beschrieben eine essentielle Rolle in biokinetischen Modellen zur Bestimmung der Dosis nach Radonexposition, da sie zur Berechnung von Verteilungskoeffizienten benötigt wird. In vorangegangenen Arbeiten zeigten sich Abweichungen in weißem Knochenmark und Fettgewebe von bisherigen Annahmen der ICRP [10]. Bei ähnlicher Gewebezusammensetzung wird in aktuellen Modellen eine ähnliche Löslichkeit angenommen, dennoch löst sich deutlich mehr Radon in weißem Knochenmark als im Fettgewebe [7]. Ausgehend von dieser Diskrepanz sollte die Löslichkeit von Radon in verschiedenen Proben nach einer Stunde Exposition bestimmt werden.

#### 3.7.1. Probenauswahl und -vorbereitung

Die Löslichkeit von Radon in Blut ist relevant, da diese für die Bestimmung der Verteilungskoeffizienten genutzt wird. Um nicht nur die eingeschränkte Datenlage zu verbessern, sondern auch um zu überprüfen, ob die Berechnung der Löslichkeit in Blut als gewichteter Mittelwert zutreffend ist, sollte die Löslichkeit in Blut und dessen Hauptbestandteilen bestimmt werden. Hierfür wurden humanes Vollblut, humanes Erythrozytenkonzentrat sowie humanes Blutplasma vom Deutschen Roten Kreuz (DRK) Blutspendedienst erworben. Um die ohnehin knappen Bestände an Blutproben nicht zusätzlich zu belasten, wurden Vollblutspenden verwendet, die bei gleichbleibender Qualität nicht für Transfusionen zugelassen wurden, da bei der Blutspende die Grenzwerte für die Dauer der Blutentnahme überschritten wurden. Zusätzlich wurde verfallenes Erythrozytenkonzentrat verwendet, dass die garantierte Haltbarkeit des DRK (42 d) um einen Tag überschritten hatte. Die längere Lagerung von Erythrozytenkonzentrat beeinflusst die 24 h-Überlebenszeit der Erythrozyten in vivo [80]. Da diese in den durchgeführten Experimenten allerdings nicht in den lebenden Organismus transfundiert werden, sondern nur die passive Diffusion von Radon betrachtet wird, sollte dies die Ergebnisse nicht nennenswert beeinflussen. Da die Lagerdauer der Erythrozyten bei allen Proben gleich war, können die verschiedenen Erythrozytenkonzentrate miteinander verglichen werden. Beide Probentypen wurden beim Blutspendedienst bei 2–6 °C gelagert. Im Gegensatz dazu wurde das Blutplasma als gefrorenes Frischplasma bezogen und jeweils bei Raumtemperatur aufgetaut, um es in flüssiger Form exponieren zu können.

Bei der Herstellung einer Blutprobe durch das DRK wird einem Patienten 500 ml Blut abgenommen und in einem 4-fach Entnahmebeutel direkt mit 70 ml einer Stabilisator-Lösung gemischt. Die wichtigsten Bestandteile sind Citrate, Phosphate sowie Glukose, um die Koagulation zu verhindern, den pH-Wert zu stabilisieren und die Funktion der Erythrozyten zu erhalten [80]. Durch Zentrifugation der Probe und anschließender Separation werden die Erythrozyten, das Plasma und der sogenannte Buffy Coat (Leukozyten, Thrombozyten) voneinander getrennt. Hierbei wird dem Erythrozytenkonzentrat 110 ml Additivilösung zugesetzt, die der weiteren Stabilisation der Probe dient und die Lebensdauer der Erythrozyten und somit auch die mögliche Lagerdauer erhöht. Sie besteht aus Phosphaten, Adenin, Glukose, Guanodin und Mannitol in Kochsalzlösung. Während die Zusätze ein klar definiertes Volumen aufweisen, variiert der Anteil an Erythrozyten und Plasma je Spender. Daraus ergeben sich die in Tabelle 3.1 gezeigten Zusammensetzungen.

**Tabelle 3.1.** Zusammensetzung der Blutproben mit dem Anteil der Zusätze

	Probenanteil [%]	Stabilisator-Lösung [%]	Additivlösung [%]
Vollblut	87,7	12,3	–
Erythrozyten	50–70	1–10	29–40
Plasma	65–82	18–35	–

Um auf den Ergebnissen in den Blutproben aufbauend zu überprüfen, ob bestimmte Proteine die Löslichkeit besonders beeinflussen, wurde diese in Hämoglobin und Albumin in verschiedenen Konzentrationen bestimmt. Wie in Kapitel 2.5.1 beschrieben, ist Hämoglobin der Hauptbestandteil der Erythrozyten und liegt in Vollblut mit einer nativen Konzentration von 120–180  $\frac{g}{l}$  vor. Albumin ist mit einer Konzentration von etwa 35–45  $\frac{g}{l}$  in Vollblut [23] das am häufigsten vorkommende Protein im Blutplasma.

Der native Bereich des jeweiligen Proteins sollte abgebildet und ein Vergleich der beiden Proteine ermöglicht werden. Außerdem sollte eine Konzentrationsabhängigkeit im Hämoglobin untersucht werden. Da die 3D-Strukturen von humanem und bovinem Hämoglobin und Albumin nur minimale Abweichungen zeigen (siehe Anhang A.1.1), können Erkenntnisse aus den Experimenten auf die humanen Proteine übertragen werden. Die bovinen Proteine wurden in vollentsalztem (VE)-Wasser gelöst, um folgende Konzentrationen herzustellen:

- **Hämoglobin:** 5 %, 12 %, 18 %, 25 %
- **Albumin:** 2 %, 5 %, 12 %

Des Weiteren wurde eine 12 %ige Hämoglobin-Lösung hitzedenaturiert, indem diese für 40 min bei 80 °C in einem Heizschrank erhitzt wurde [81]. Die Probe wurde vor Expositionsbeginn auf Raumtemperatur heruntergekühlt.

Zusätzlich zu den Blutproben sollte die in biokinetischen Modellen der ICRP genutzte additive Berechnung der Löslichkeit in einem Flüssigkeitsgemisch überprüft werden. Um sicherzustellen, dass sich genügend Radon in der Probe löst, wurde zum einen Ölsäure ausgewählt, dessen erhöhte Radon-Löslichkeit im Vergleich zu Wasser aus vorangegangenen Experimenten bekannt war [82]. Als zweite Flüssigkeit diente 1-Pentanol, das gut mit Ölsäure mischbar ist [83] und im Vergleich zu kürzerkettigen Alkoholen weniger flüchtig ist. Die beiden Flüssigkeiten wurden separat sowie in einer 1:1 Mischung exponiert und die Radon-Löslichkeit bestimmt.

### 3.7.2. Exposition

Die verschiedenen Proben wurden in einen aus PLA gedruckten Zylinder ( $r_{\text{Innen}} = 3,5 \pm 0,1$  cm;  $h_{\text{Probe}} = 1,0 \pm 0,05$  cm) gefüllt. Um eine vollständige Füllung des Gefäßes sicherzustellen, wurde ein Füllstandsprüfer genutzt, dessen untere Kante mit der Füllkante der Probe abschließt (siehe Abbildung 3.11).



**Abbildung 3.11.** Schemazeichnung eines Gefäßes (hellgrau) zur Bestimmung der Löslichkeit inklusive Füllstandsprüfer (dunkel grau) zur Sicherstellung der vollständigen Befüllung mit der Probe (orange)

Die Gefäße wurden entsprechend bis dorthin befüllt und offen in der Radonkammer positioniert. Da die Diffusion von Radon in die Proben lediglich an der oberen Fläche der Probe stattfindet, ergibt sich das Oberflächen-Volumen-Verhältnis ( $\frac{A}{V}$ ) zu  $\frac{A}{V} = 1 \frac{1}{cm}$  [84]. Radon wurde eingeleitet und die Proben wurden für eine Stunde exponiert, wobei Proben mit einer gering zu erwartenden Löslichkeit bei höheren Radonaktivitätskonzentration exponiert wurden. Dadurch kann die Qualität der Auswertung gesteigert werden, ohne dass die Löslichkeit davon beeinflusst wird [7]. Dies wird im nachfolgenden Kapitel genauer erklärt.

Anschließend wurden die Proben innerhalb der Kammer mit einem etablierten System verschlossen. Die Gefäße wurden automatisch innerhalb der Kammer verschlossen, wobei durch das Design der Gefäße sichergestellt wurde, dass keine radonhaltige Luft im Gefäß eingeschlossen wurde. Dies würde die Ergebnisse verfälschen und zu einer erhöhten gemessenen Löslichkeit führen. Bevor die Kammer geöffnet wurde, wurde sie für 5 min mit Luft gespült, um eine Kontamination des Labors zu vermeiden und den Strahlenschutz zu gewährleisten. Nach dem Spülen wurden die Proben gesichert und die erste Messung frühestens 12 h nach Exposition begonnen, um sicherzustellen, dass die Oberflächenkontamination unterhalb der Detektionsgrenze liegt und somit nicht mehr die Ergebnisse beeinflusst. Weitere Details zur Messmethode finden sich in [7].

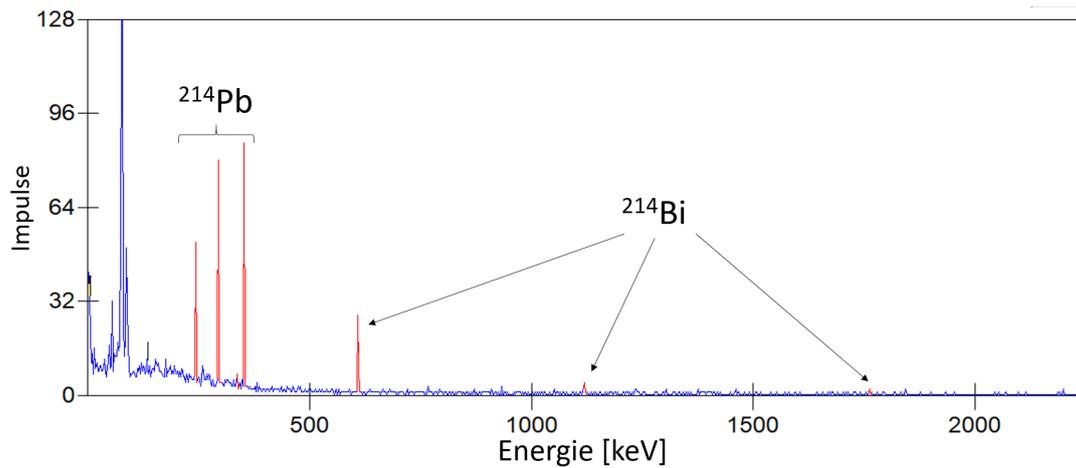
#### 3.7.3. Gammaskopie

Die Aktivität der Probe nach Exposition wird zur Berechnung der Löslichkeit benötigt. Hierfür wird nicht Radon selbst detektiert, sondern die gamma-strahlenden Zerfallsprodukte  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$ . Wie in Abbildung 2.5 gezeigt, befindet sich Radon nach etwa 3 h mit diesen Zerfallsprodukten im radioaktiven Gleichgewicht, sodass ihre Aktivitäten identisch sind.

Zur Detektion wird ein hochreiner Germaniumdetektor (Typ BE3825, Mirion Technologies (Cannberra) Inc., Atlanta (GA), USA) genutzt, dessen Germaniumkristall wie eine pin-Diode aufgebaut ist. Hierbei sind die p- und n-dotierte Schicht durch eine ladungsverarmte Zone voneinander getrennt und die angelegte Spannung ( $U = 3500 \text{ V}$ ) in Sperrrichtung vergrößert diese Zone zusätzlich. Um das Rauschen zu verringern und das Signal zu verbessern, wird der Detektor mit flüssigem Stickstoff gekühlt [85].

Trifft ein Gammaquant auf diese Sperrschicht, kommt es zur Wechselwirkung mit der Materie, die abhängig von der Energie des Photons ist. Wie ein Kapitel 2.1.3 beschrieben, wird ein Spannungspuls proportional zur Energie des Photons erzeugt, der anschließend die Zuordnung zu einem speziellen Nuklid ermöglicht.

Die Nettopeakfläche ( $A_{\text{Netto}}$ ) in dem entstehenden Spektrum wird bestimmt, anhand der spezifischen Zerfallsenergie dem jeweiligen Nuklid zugeordnet (siehe Abbildung 3.12) und im Anschluss die Aktivität berechnet. Die  $A_{\text{Netto}}$  ergibt sich aus der gemessenen Fläche unterhalb des Peaks, von der die Fläche des Untergrundrauschens abgezogen wird.

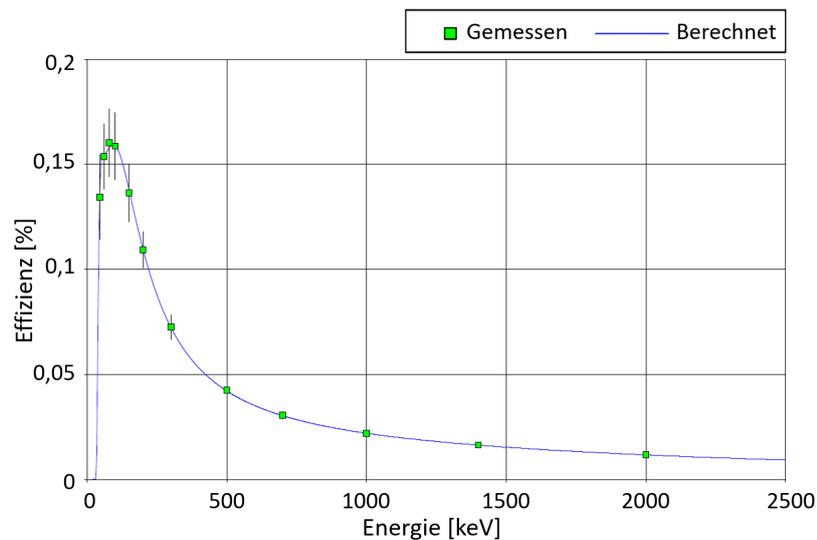


**Abbildung 3.12.** Gammaspektrum einer 1:1 Mischung aus 1-Pentanol und Ölsäure nach Radonexposition zur Bestimmung der Löslichkeit, rot: Peaks von  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$

Die Aktivität kann anschließend mit folgender Formel berechnet werden [86]:

$$A = \frac{A_{\text{Netto}}}{\epsilon_{\text{Det}} \cdot p_{\lambda} \cdot t_{\text{meas}} \cdot f_{\text{Zerfall}} \cdot f_{\text{Koin}}} \quad (3.4)$$

Neben  $A_{\text{Netto}}$  müssen die Detektoreffizienz ( $\epsilon_{\text{Det}}$ ), die Zerfallswahrscheinlichkeit ( $p_{\lambda}$ ), die Messzeit ( $t_{\text{meas}}$ ) des Spektrums, die Zerfallskorrektur ( $f_{\text{Zerfall}}$ ) sowie die Koinzidenzkorrektur ( $f_{\text{Koin}}$ ) berücksichtigt werden.  $\epsilon_{\text{Det}}$  beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass ein einfallendes Photon detektiert wird. Sie ist von der Energie des Photons abhängig und wird für jede Probe mit Hilfe des Programms GENIE 2000 bestimmt. Bei geringen Energien werden eintreffende Photonen teilweise oder komplett in der zum Schutz des Kristalls vorhandenen Detektorendkappe absorbiert und dementsprechend nicht detektiert. Dies führt zu einem Anstieg der Detektionseffizienz bis zu einem Maximum bei etwa 80 keV. Anschließend sinkt diese wieder, da mit steigender Energie des Photons der lineare Schwächungskoeffizient sinkt (siehe Abschnitt 2.1.3) und somit wird auch die Wahrscheinlichkeit der Detektion geringer (siehe Abbildung 3.13). Zusätzlich wird die Geometrie der Probe mit Hilfe des Programms ISOCS/LabSOCS in der Berechnung berücksichtigt. Bei einer unendlich dünnen, punktförmigen Quelle direkt am Detektor könnte Gammastrahlung in einem Raumwinkel von  $2\pi$  detektiert werden. Dieser Wert ist für die durchgeführten Experimente wegen der Ausdehnung der Probe allerdings geringer und muss daher beachtet werden. Zusätzlich wird die Selbstschwächung und Selbstabsorption innerhalb der Probe berücksichtigt. Exemplarisch ist eine Energiekalibrierung in einer 1:1 Mischung aus 1-Pentanol und Ölsäure gezeigt.



**Abbildung 3.13.** Effizienz des Gammadetektors in Abhängigkeit der Photonenenergie eines Spektrums von einer 1:1 Mischung aus 1-Pentanol und Ölsäure bestimmt mit GENIE 2000, grün: gemessene Detektoreffizienz, blau: berechnete Detektoreffizienz

Die Zerfallswahrscheinlichkeit ( $p_\lambda$ ) gibt an, wie wahrscheinlich ein spezieller Übergang zwischen dem angeregten und dem energetisch niedrigeren Zustand ist, bei dem ein Gammaquant emittiert wird. Diese Größe variiert für die verschiedenen Übergänge innerhalb eines Nuklids, wobei folgende Übergänge mit ihren jeweiligen  $p_\lambda$  in den aufgenommenen Spektren detektiert werden konnten (siehe Abbildung 3.12):

**Tabelle 3.2.** Zerfallsenergien und Zerfallswahrscheinlichkeiten von  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$ , Daten aus [28]

Nuklid	Zerfallsenergie [keV]	$p_\lambda$ [%]
$^{214}\text{Pb}$	242,0	7,251
	295,2	18,42
	351,9	35,6
$^{214}\text{Bi}$	609,3	45,49
	1120,3	14,92
	1764,5	15,3

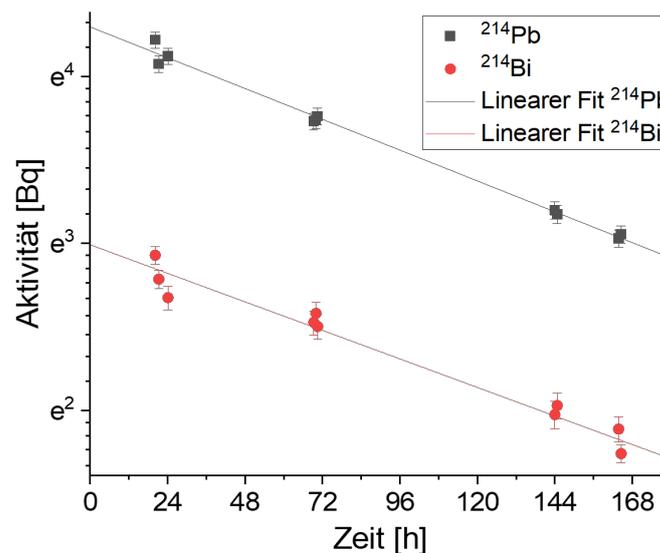
Zusätzlich wird die Messzeit ( $t_{\text{meas}}$ ) des Spektrums benötigt. Diese wird je nach Aktivität der Probe angepasst, wobei sie mit sinkender Aktivität erhöht werden muss, damit die Peaks eindeutig vom Hintergrundrauschen abgegrenzt werden können. Die Messzeit variierte zwischen 5–560 min.

Die Zerfallskorrektur ( $f_{\text{Zerfall}}$ ) berücksichtigt den radioaktiven Zerfall eines Nuklids während der Spektrenaufnahme und eine damit verbundene Verringerung der Aktivität. Dies ist insbesondere dann entscheidend, wenn die Messzeit größer ist als die Halbwertszeiten der zu detektierenden Nuklide. Die physikalische Halbwertszeit der beiden Nuklide  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  (siehe Abbildung 2.4) ist zwar bei langen Messzeiten geringer, da sie sich allerdings mit Radon im radioaktiven Gleichgewicht befinden, entsprechen ihre effektiven Halbwertszeiten der des Radons und übersteigen die Messzeiten mit 3,8 d deutlich.

Die Koinzidenzkorrektur ( $f_{\text{Koin}}$ ) ist insbesondere bei hohen Aktivitäten einer Probe von Relevanz. Treffen bei hohen Aktivitäten zwei Photonen zeitlich sehr kurz hintereinander auf den Detektor, werden sie zeitgleich detektiert und können dabei nicht separiert aufgelöst werden. Dies führt zu einer falschen Energiezuordnung und somit wird die tatsächliche Anzahl an Zerfällen unterschätzt. Um dies auszugleichen, wird  $f_{\text{Koin}}$  für die Berechnung der Aktivität berücksichtigt.

### 3.7.4. Extrapolation der Daten und Berechnung der Löslichkeit

Es werden in einem Zeitraum von bis zu zwei Wochen mehrere Gammasppektren aufgenommen und die jeweilige Aktivität nach Formel 3.4 berechnet und logarithmisch gegen die Zeit nach Expositionsende aufgetragen. Die Proben sind wie in Kapitel 3.7.2 beschrieben radondicht verschlossen und nach etwa 3 h stellt sich das radioaktive Gleichgewicht zwischen Radon und den gamma-strahlenden Zerfallsprodukten ein. Zur Bestimmung der Löslichkeit kann durch Extrapolation der Daten mit einer linearen Funktion die Aktivität direkt nach der Exposition bestimmt werden (siehe Abbildung 3.14). Der berechnete Schnittpunkt mit der y-Achse entspricht hierbei der Aktivität zum Zeitpunkt direkt nach Exposition ( $t = 0$  h).



**Abbildung 3.14.** Bestimmung der Aktivität in einem Gemisch aus Ölsäure und 1-Pentanol zum Zeitpunkt direkt nach Exposition ( $t = 0$  h) durch halblogarithmische Auftragung der durch Gammasppektroskopie bestimmten Aktivitäten (Grau:  $^{214}\text{Pb}$ , rot:  $^{214}\text{Bi}$ ) gegen die Zeit und Extrapolation

Im Verlauf der Arbeit zeigten sich Abweichungen der gemessenen Aktivitäten des  $^{214}\text{Pb}$  und des  $^{214}\text{Bi}$ . Diese sind auf einen Fehler in der Einstellung des Detektors zurückzuführen, die nach Rücksprache mit dem Hersteller für zukünftige Experimente behoben werden konnte. Für die Experimente, bei denen dieser Fehler auftrat, wurden lediglich die Ergebnisse der  $^{214}\text{Pb}$  Messungen genutzt, da diese nicht fehlerbehaftet waren.

Aus der bestimmten Aktivität direkt nach Exposition ( $A_{\text{Probe}, t=0}$ ) kann anschließend die Löslichkeit ( $S$ ) berechnet werden, indem diese auf die Probenmasse ( $m_{\text{Probe}}$ ) und die Radonaktivi-

tätskonzentration ( $c(\text{Rn})$ ) normiert wird (siehe Formel 3.5). Da die Löslichkeit nach einer Stunde Exposition unabhängig von der  $c(\text{Rn})$  ist [7], ermöglicht dieses Vorgehen auch den Vergleich von Proben, die bei unterschiedlichen  $c(\text{Rn})$  exponiert wurden.

$$S = \frac{\frac{A_{\text{Probe}, t=0}}{m_{\text{Probe}}}}{c(\text{Rn})} \quad (3.5)$$

Zusätzlich lässt sich überprüfen, ob die Probe nach Exposition radondicht verschlossen wurde, indem aus der Steigung die effektive Halbwertszeit der Nuklide bestimmt wird. Bei erfolgreicher Abdichtung der Probe entspricht diese dann aufgrund des radioaktiven Gleichgewichts der Halbwertszeit von Radon.

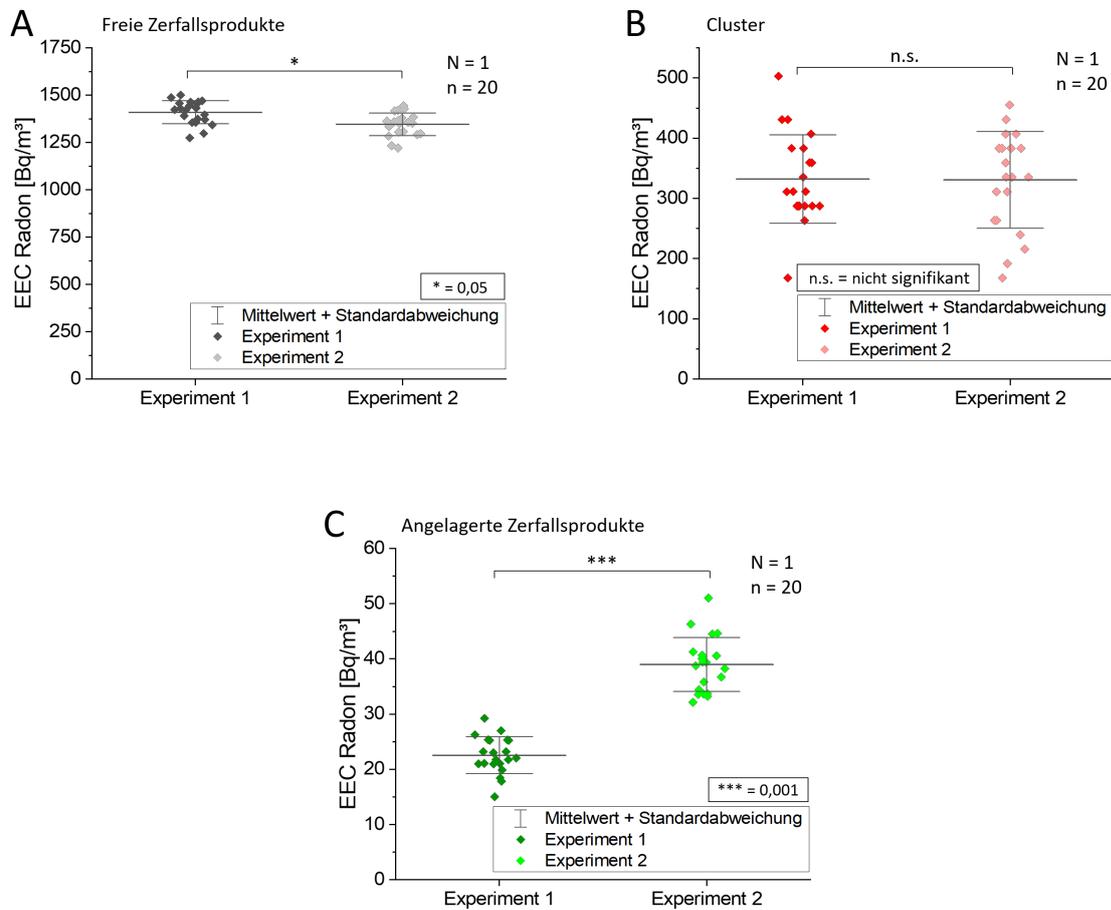
## 4. Ergebnisse

### 4.1. Charakterisierung der Radonkammer

Wie in Kapitel 3.3 beschrieben, wurde der Einfluss verschiedener Parameter auf die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte in der Radonkammer bestimmt, um daraus Rückschlüsse auf den Einfluss verschiedener Umweltparameter ziehen zu können. Um die Vergleichbarkeit zwischen verschiedenen Experimenten und Expositionsbedingungen zu gewährleisten, wurde pro Experiment nur ein Parameter variiert, während die anderen beibehalten wurden. Durch dieses Vorgehen ist die eindeutige Zuordnung von potentiellen Messunterschieden zur Ursache möglich. Für die Auswertung wurden die Messdaten des Experiments zwischen 180–240 min nach Einleiten von Radon genutzt, da sich ab diesem Zeitpunkt ein radioaktives Gleichgewicht zwischen Radon und seinen Zerfallsprodukten eingestellt hat (siehe Abbildung 2.5). Wie nachfolgend gezeigt wird, erreichten die freien Zerfallsprodukte in diesem Messzeitraum einen konstanten Wert (siehe Abbildung 3.5), wodurch die Mittelung über diesen Bereich berechtigt scheint. Wenn nicht anders beschrieben, sind Mittelwert und Standardabweichung angegeben, Signifikanzen wurden mit Hilfe des Welch-Tests berechnet.

#### 4.1.1. Reproduzierbarkeit der Daten

In den ersten Experimenten wurde überprüft, ob es mit dem genutzten Expositionssystem möglich ist, reproduzierbare Ergebnisse bei gleichen Parametern zu erhalten. Dies ist notwendig, um potentielle Unterschiede bei variierenden Expositionsbedingungen der jeweiligen Veränderung zuordnen zu können. Die freien Zerfallsprodukte sowie die Cluster zeigten reproduzierbare Ergebnisse. Im Gegensatz dazu schwankten die angelagerten Zerfallsprodukte trotz gleicher Bedingungen und es wurden interexperimentelle Unterschiede deutlich. Exemplarisch sind die Messwerte der drei verschiedenen Größenfraktionen gezeigt (siehe Abbildung 4.1 und Tabelle 4.1), wobei die Experimente unter vergleichbaren Bedingungen durchgeführt wurden.



**Abbildung 4.1.** EEC der freien Zerfallsprodukte (A), Cluster (B) und angelagerten Zerfallsprodukte (C) bei Experimenten mit vergleichbaren Expositionsbedingungen nach Erreichen des radioaktiven Gleichgewichts (T:  $22,3 \pm 0,1^\circ\text{C}$ , rH:  $28,5 \pm 5,9\%$ ,  $c(\text{Rn}): 85,1 \pm 0,9 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ )

**Tabelle 4.1.** Vergleich der Mittelwerte und Standardabweichung der EEC der Größenfraktionen bei gleichen Expositionsbedingungen (T:  $22,3 \pm 0,1^\circ\text{C}$ , rH:  $28,5 \pm 5,9\%$ ,  $c(\text{Rn}): 85,1 \pm 0,9 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ )

Größenfraktion	Experiment 1	Experiment 2
	EEC Radon [ $\frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$ ]	EEC Radon [ $\frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$ ]
Freie Zerfallsprodukte	$1409 \pm 61$	$1345 \pm 60$
Cluster	$331 \pm 74$	$331 \pm 81$
Angelagerte Zerfallsprodukte	$22,5 \pm 3,4$	$39,0 \pm 4,9$

Der Vergleich zeigte einen minimalen Unterschied der freien Zerfallsprodukte (siehe Abbildung 4.1A), wobei in Tabelle 4.1 deutlich wird, dass die Daten innerhalb ihrer Standardabweichung überlappen. Auch wenn ein schwach signifikanter Unterschied ( $p < 0,05$ ) berechnet werden konnte, zeigten weitere Experimente (nicht dargestellt), dass die freien Zerfallsprodukte zwischen Experimenten gleicher Bedingungen nur minimal innerhalb der jeweiligen Standardabweichung voneinander abwichen.

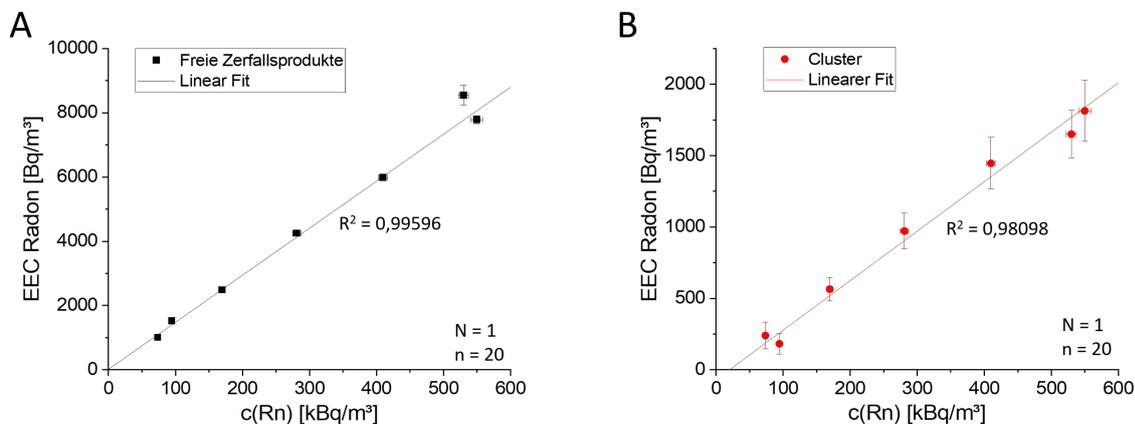
Der Vergleich der Cluster zeigte keine signifikanten Unterschiede (siehe Abbildung 4.1B), auch dies konnte in weiteren Experimenten bestätigt werden.

Im Gegensatz dazu wurden signifikante Schwankungen bei den angelagerten Zerfallsprodukten beobachtet (siehe Abbildung 4.1C). Die eindeutige Zuordnung zwischen Messergebnissen und der Variation eines Expositionsparameters ist nicht eindeutig möglich, da gemessene Variationen nicht zwangsläufig durch die veränderten Bedingungen hervorgerufen werden müssen.

Wie in Kapitel 2.3.1 beschrieben, können die Radon-Zerfallsprodukte durch Anlagerung an Aerosolpartikel in ihrer Größe zunehmen. Dies hätte zur Folge, dass die Messwerte der EEC der freien Zerfallsprodukte und Cluster absinken, während zeitgleich die EEC angelagerten Zerfallsprodukte ansteigt. Um dies zu überprüfen, wurden die Daten der angelagerten Zerfallsprodukte bei jedem Experiment ausgewertet. Hierbei konnte kein Zusammenhang festgestellt werden. Eine beobachtete Reduktion der freien Zerfallsprodukte und der Cluster veränderte die EEC der angelagerten Zerfallsprodukte nicht und lässt darauf schließen, dass es nicht zur Agglomeration der Partikel kam, sondern diese an die Wände der Radonkammer anlagerten.

#### 4.1.2. Radonaktivitätskonzentration

Als nächstes wurde die Abhängigkeit der Größenverteilung der Zerfallsprodukte von der Radonaktivitätskonzentration untersucht, wobei diese zwischen  $70\text{--}550 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$  variiert und anschließend die gemessene EEC der jeweiligen Größenfraktion gegen die Radonaktivitätskonzentration ( $c(\text{Rn})$ ) aufgetragen wurde (4.2).



**Abbildung 4.2.** Linearer Zusammenhang der EEC der freien Zerfallsprodukte (A) sowie der Cluster (B) mit der Radonaktivitätskonzentration ( $c(\text{Rn})$ ), Fehlerbalken teilweise nicht erkennbar durch Darstellung des Datenpunkts, (T:  $22,4 \pm 0,5$  °C, rH:  $47,7 \pm 2,2$  %)

Sowohl die freien Zerfallsprodukte als auch die Cluster zeigten einen linearen Anstieg mit der Radonaktivitätskonzentration in dem gemessenen Bereich, wobei zusätzlich deutlich wurde, dass die freien Zerfallsprodukte den höchsten Anteil an Radon-Zerfallsprodukten in der Kammer ausmachten (siehe Skala Abbildung 4.2).

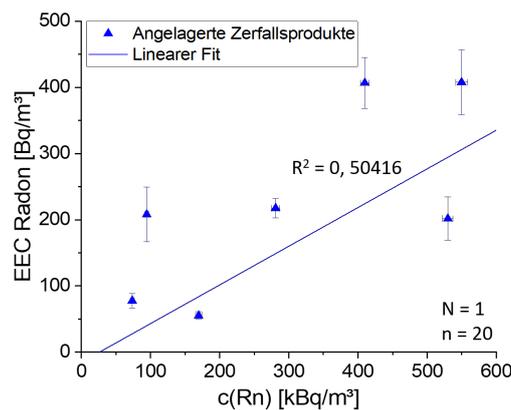
Das Verhältnis der jeweiligen EEC der Größenfraktion zur Radonaktivitätskonzentration kann durch eine Konstante beschrieben werden. Diese einheitenlose Größe wird im Weiteren mit „R\_EEC“ bezeichnet.

$$\text{Freie Zerfallsprodukte: } R\_EEC_{\text{Freie Zerfallsprodukte}} = \frac{EEC_{\text{Frei}}}{c(Rn)} = \textit{konst.} \quad (4.1)$$

$$\text{Cluster: } R\_EEC_{\text{Cluster}} = \frac{EEC_{\text{Cluster}}}{c(Rn)} = \textit{konst.} \quad (4.2)$$

Für nachfolgende Experimente ermöglicht dies den Vergleich von Experimenten bei unterschiedlichen Radonaktivitätskonzentrationen durch Normierung und der Angabe des „R\_EEC“.

Das Verhältnis der angelagerten Zerfallsprodukte zur Radonaktivitätskonzentration zeigte keinen charakteristischen Zusammenhang (siehe Abbildung 4.3) und wird dementsprechend nicht durch eine Konstante beschrieben (siehe Formel 4.3). Da bereits Schwankungen bei gleichen Expositionsbedingungen beobachtet wurden, war zu erwarten, dass diese Schwankungen ebenfalls bei höheren Radonaktivitätskonzentrationen auftreten würden.



**Abbildung 4.3.** R\_EEC der angelagerten Zerfallsprodukte gegen die Radonaktivitätskonzentration ( $c(Rn)$ ) mit linearem Fit, Fehlerbalken teilweise nicht erkennbar durch Darstellung des Datenpunkts, (T:  $22,4 \pm 0,5$  °C, rH:  $47,7 \pm 2,2$  %)

$$\text{Angelagerte Zerfallsprodukte: } R\_EEC_{\text{Angelagert}} = \frac{EEC_{\text{Angelagert}}}{c(Rn)} \neq \textit{konst.} \quad (4.3)$$

Die angelagerten Zerfallsprodukte waren bei gleichen Expositionsbedingungen nicht vergleichbar und zeigten keinen linearen Anstieg mit der Radonaktivitätskonzentration. Sie werden daher im weiteren Verlauf dieser Arbeit nicht gezeigt.

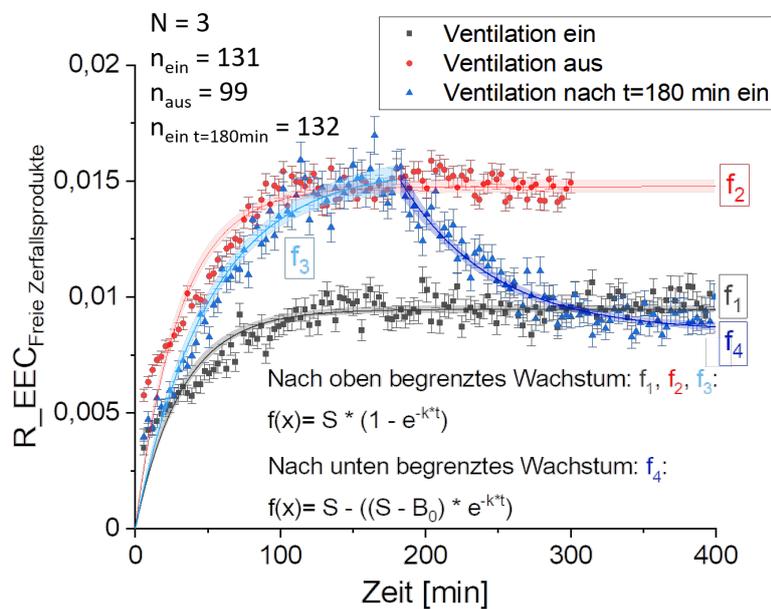
### 4.1.3. Ventilation

Der Einfluss der Ventilation der Radonkammer wurde überprüft, da als Maßnahme zur Reduzierung der Strahlenbelastung in Gebäuden diese belüftet oder aktive Filtersysteme genutzt werden. Um zu bestimmen, ob durch die Bewegung der Luft mit Hilfe eines Ventilators im Inneren der Kammer eine Reduktion der Zerfallsprodukte erreicht werden kann, wurden Experimente mit und

ohne Ventilation durchgeführt. Um zusätzlich herauszufinden, ob das Anschalten des Ventilators auch nach Erreichen des radioaktiven Gleichgewichts einen Effekt hat, wurde ein Experiment durchgeführt, bei dem erst nach  $t = 180$  min der Ventilator eingeschaltet wurde.

Die Ergebnisse zeigten, dass sich mit und ohne Ventilation nach etwa 120 min ein konstanter  $R\_EEC$  der freien Zerfallsprodukte einstellte, wobei die Ventilation zu einer deutlichen Reduktion der freien Zerfallsprodukte führte. Die Daten können durch ein nach oben begrenztes Wachstum beschrieben werden.

Wird der Ventilator nach 180 min angeschaltet, dann sank der  $R\_EEC$  auf das gleiche Niveau ab, wie es bei dauerhaft eingeschaltetem Ventilator der Fall war (siehe Abbildung 4.4) und konnte durch ein nach unten begrenztes Wachstum beschrieben werden. Die jeweiligen Fitparameter sind in Tabelle 4.2 gezeigt.



**Abbildung 4.4.**  $R\_EEC$  der freien Zerfallsprodukte bei Variation der Ventilation, Fehlerbalken entsprechen dem Messfehler des Geräts, (T:  $22,4 \pm 0,2$  °C, rH:  $42,2 \pm 6,2$  %)

**Tabelle 4.2.** Fitparameter des begrenzten Wachstums der  $R\_EEC$  der freien Zerfallsprodukte bei unterschiedlicher Ventilation (T:  $22,4 \pm 0,2$  °C, rH:  $42,2 \pm 6,2$  %)

Experiment	S	k [ $\frac{1}{min}$ ]	$B_0$
Ventilation ein ( $f_1$ )	$0,00946 \pm 8 \cdot 10^{-5}$	$0,0312 \pm 0,0013$	–
Ventilation aus ( $f_2$ )	$0,01476 \pm 1,4 \cdot 10^{-4}$	$0,0325 \pm 0,0013$	–
Ventilation nach $t=180$ min ein ( $f_3$ )	$0,0155 \pm 3,9 \cdot 10^{-4}$	$0,0198 \pm 0,0012$	–
Ventilation nach $t=180$ min ein ( $f_4$ )	$0,0085 \pm 1,5 \cdot 10^{-4}$	$0,0158 \pm 0,0017$	$0,126 \pm 0,004$

Die graphisch bestimmte annähernde Übereinstimmung der freien Zerfallsprodukte sollte zusätzlich rechnerisch quantifiziert werden. Die S-Werte der Funktionen lagen für gleiche Einstellungen der Ventilation in der gleichen Größenordnung (siehe Tabelle 4.2 Ventilation ein:  $f_1, f_4$ ; Ventilation aus:  $f_2, f_3$ ). Um die Daten besser auswerten zu können, wurden die Funktionswerte für zwei verschiedene Zeitpunkte ( $t_1 = 180$  min,  $t_2 = 360$  min) verglichen.

Für die ausgeschaltete Ventilation wurden zum einen die Daten des Experiments „Ventilation aus“ mit den Daten „Ventilation nach t=180 min ein“ zum Zeitpunkt  $t_1$  verglichen. Zum anderen wurden die Experimente mit eingeschalteter Ventilation zum Zeitpunkt  $t_2$  betrachtet und dafür die Experimente „Ventilation ein“ und „Ventilation nach t=180 min ein“ gegenübergestellt (siehe Tabelle 4.3).

**Tabelle 4.3.** Vergleich der Funktionswerte des  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte zum Zeitpunkt  $t = 180$  min bei ausgeschaltetem Ventilator und zum Zeitpunkt  $t = 360$  min bei angeschaltetem Ventilator

Ventilation	Experiment	Zeitpunkt	Berechneter $R_{EEC}$
Aus	Ventilation aus	180 min	$0,01471 \pm 0,0004$
	Ventilation nach t=180min ein		$0,01434 \pm 0,0006$
Ein	Ventilation nach t = 180min ein	360 min	$0,0089 \pm 0,0007$
	Ventilation an		$0,0095 \pm 0,0005$

Hierbei konnte bestätigt werden, dass sich die Ergebnisse bei ausgeschaltetem Ventilator ( $t = 180$  min) nicht signifikant unterschieden (siehe Tabelle 4.3), da es gleiche Expositionsbedingungen waren und die Reproduzierbarkeit der freien Zerfallsprodukte bereits überprüft wurde (siehe Abschnitt 4.1.1).

Der zweite Vergleich ( $t = 360$  min) zeigte, dass sich der Endwert nicht signifikant unterschied, unabhängig davon ob der Ventilator bereits von Beginn an angeschaltet war oder erst nach Erreichen des Maximums eingeschaltet wurde. Ist die Dauer der Ventilation lang genug, in diesem Fall 180 min, dann wird in etwa der gleiche Endwert erreicht (siehe Tabelle 4.3).

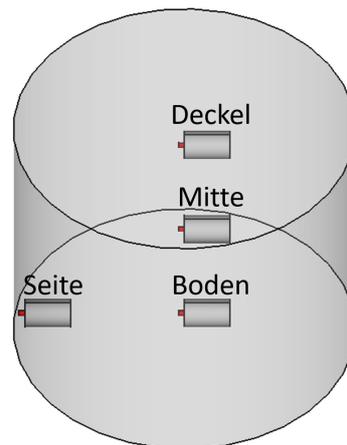
Einen ähnlichen Trend zeigten die Cluster, wobei die deutlich höheren Messfehler des Geräts zu einer erhöhten Ungenauigkeit der Daten führten, diese sind in Abschnitt A.2.2 gezeigt.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Bewegung der Luft im Kammerinneren ohne zusätzliche Nutzung von Filtersystemen und ohne die Zufuhr von radonfreier Luft zu einer Reduktion der freien Zerfallsprodukte und Cluster führt.

#### 4.1.4. Räumliche Verteilung

Im nächsten Schritt wurde die räumliche Verteilung von Radon und seinen Zerfallsprodukten innerhalb der Kammer untersucht. Da Radon als Gas eine höhere Dichte als Luft hat, kann es zu einer ungleichmäßigen Verteilung in großen Volumen kommen. Im Gegensatz dazu lagern die Zerfallsprodukte, die Schwermetalle sind, aufgrund verschiedener auf sie wirkender Kräfte (siehe Kapitel 2.3.2) unterschiedlich an Oberflächen an oder sinken zu Boden. Diese Effekte können ebenfalls zu Unterschieden in der räumlichen Verteilung führen.

Um zu überprüfen, ob diese Effekte in der genutzten Radonkammer zum Tragen kommen, wurde der Detektorkopf an verschiedenen Positionen innerhalb der Kammer platziert (siehe Abbildung 4.5) und die Radonaktivitätskonzentration sowie die EEC der Zerfallsprodukte gemessen.

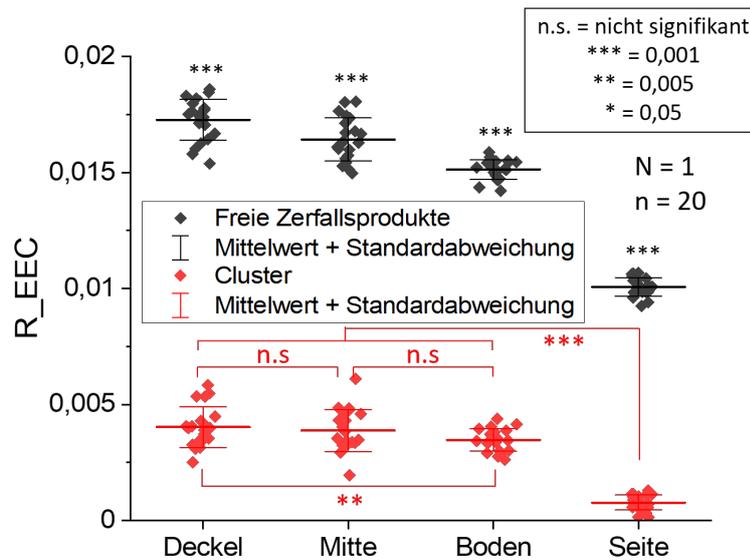


**Abbildung 4.5.** Positionen des Detektorkopfes in der Radonkammer zur Bestimmung der räumlichen Verteilung der Zerfallsprodukte, rot = Detektorkopf-Öffnung und Position des Gitters, an der die Luft in das Messgerät gesogen wird

Die Messung der Radonaktivitätskonzentration bei unterschiedlichen Positionen des Detektorkopfes zeigte nur erwartbare statistische Abweichungen im Bereich des 95 % Konfidenzintervalls (siehe Abbildung A.5) im Vergleich zur berechneten Radonaktivitätskonzentration (siehe Abbildung 3.2). Eine potentielle Akkumulation von Radon bei geringerem Abstand zum Kammerboden konnte somit nicht festgestellt werden und es wird von einer gleichmäßigen Verteilung ausgegangen.

Die freien Zerfallsprodukte sanken mit absteigendem Abstand zum Kammerboden. Sie wurden signifikant um  $5 \pm 7\%$  zwischen Messungen mit dem größten Abstand zum Boden (Deckel) verglichen mit Messungen in der Mitte der Kammer verringert. Der Vergleich zwischen Messungen mit dem größten und kleinsten Abstand zum Kammerboden (Boden) zeigte eine Reduktion um  $12 \pm 5\%$ .

Wurde der Detektorkopf in 0,5 cm Entfernung zur Kammerwand platziert, wurden die freien Zerfallsprodukte um  $33 \pm 4\%$  im Vergleich zur Messung bei gleicher Höhe in der Mitte reduziert. Einen ähnlichen Trend der Reduktion mit sinkendem Abstand zum Kammerboden zeigten die Cluster, wobei die Unterschiede deutlich geringer waren. Hier wurden signifikant geringere Werte an der Seite der Kammer gemessen (siehe Abbildung 4.6).



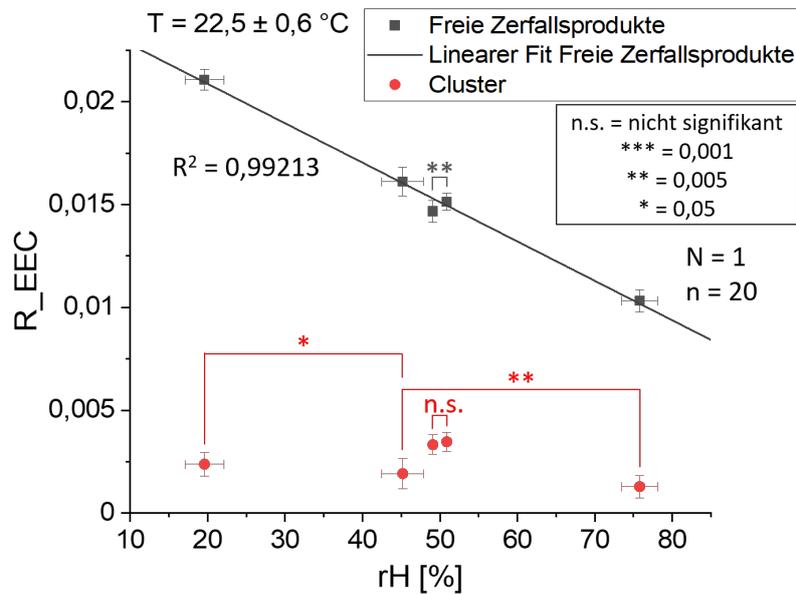
**Abbildung 4.6.** R\_EEC der freien Zerfallsprodukte (schwarz) und Cluster (rot) bei verschiedenen Positionen des Detektorkopfes, ( $T: 22,6 \pm 0,5 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $rH: 43,9 \pm 7,6 \%$ ), Unterschiede der freien Zerfallsprodukte untereinander  $p < 0,001$

#### 4.1.5. Relative Luftfeuchtigkeit

Die Variation der Luftfeuchtigkeit hat direkten Einfluss auf die vorhandene Menge des gasförmigen Wasserdampfes in der Luft und beeinflusst somit die Partikelgrößenverteilung der Luft. Wie in Kapitel 2.4 und 2.3.1 erklärt, können die Zerfallsprodukte an Wasserdampf anlagern und somit stellte sich die Frage, wie groß dieser Effekt im genutzten Expositionssystem ist. Ein möglicher Effekt ist nicht nur in geschlossenen Räumen sondern ebenfalls in der Umwelt von Relevanz. Hierbei werden Messungen in der Umwelt meist durch mehrere Umweltparameter gleichzeitig beeinflusst (Bsp.: Temperatur und Luftfeuchtigkeit; Luftfeuchtigkeit und Niederschlag) und können somit nur den kombinierten Effekt auf die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte bestimmen.

Um isoliert den Einfluss der relativen Luftfeuchtigkeit zu überprüfen, wurde die relative Luftfeuchtigkeit variiert und die Temperatur je Messreihe konstant gehalten ( $T_1: 22,5 \pm 0,6 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $T_2: 37,0 \pm 0,2 \text{ }^\circ\text{C}$ ). Die Ergebnisse bei unterschiedlichen Temperaturen werden im Folgenden separat betrachtet.

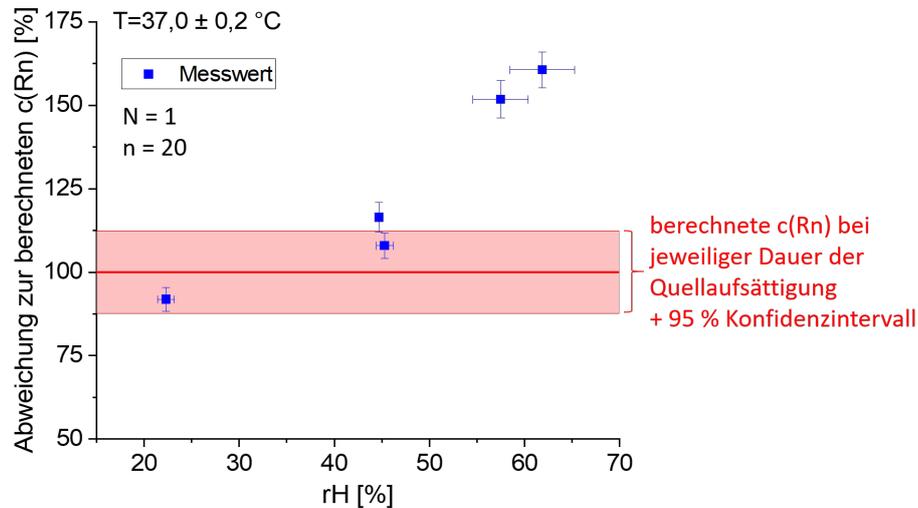
Bei Raumtemperatur ( $T_1: 22,5 \pm 0,6 \text{ }^\circ\text{C}$ ) sanken die freien Zerfallsprodukte linear mit der relativen Luftfeuchtigkeit ab, wohingegen bei den Clustern kein Trend zu erkennen war (siehe Abbildung 4.7). Lediglich bei einer Luftfeuchtigkeit von  $\approx 50 \%$  zeigten sich leicht erhöhte Werte. Eine Darstellung der Einzelwerte ist in Anhang A.6 gezeigt.



**Abbildung 4.7.**  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte mit linearem Fit (schwarz) und Cluster (rot) bei unterschiedlicher relativer Luftfeuchtigkeit ( $T: 22,5 \pm 0,6 \text{ } ^\circ\text{C}$ ), wenn nicht anders angegeben entspricht  $p < 0,001$

Es wurde eine weitere Messreihe bei höherer Temperatur ( $T_2: 37,0 \pm 0,2 \text{ } ^\circ\text{C}$ ) durchgeführt. Hierbei war aufgrund fehlerhafter Messwerte der Radonaktivitätskonzentration keine verlässliche Auswertung möglich.

Der Vergleich zwischen gemessener und der nach Formel 3.3 berechneten Radonaktivitätskonzentration zeigte deutliche Abweichungen, die mit steigender relativer Luftfeuchtigkeit zunahmen und bis zu 60 % erreichten (siehe Abbildung 4.8).



**Abbildung 4.8.** Gemessene Radonaktivitätskonzentration bei unterschiedlicher relativer Luftfeuchtigkeit (blau) und nach Formel 3.3 berechneter Wert mit 95 % Konfidenzintervall (rot) ( $T: 37,0 \pm 0,2 \text{ °C}$ )

Die fehlerhafte Messung der Radonaktivitätskonzentration und die Daten der Radon-Zerfallsprodukte werden in der Diskussion genauer betrachtet.

#### 4.1.6. Temperatur

Die Temperatur beeinflusst direkt den Diffusionskoeffizienten und kann somit ebenfalls einen Einfluss auf die Partikelgrößenverteilung in der Kammer haben (siehe Formel 2.27). Es wurde überprüft, ob eine Temperaturerhöhung einen Einfluss auf die Deposition oder Agglomeration der Zerfallsprodukte in der Kammer hat. Analog zur relativen Luftfeuchtigkeit ist die Temperatur ebenfalls ein Parameter der Umwelt, dessen Einfluss nur unter Laborbedingungen separat von anderen Veränderungen betrachtet werden kann.

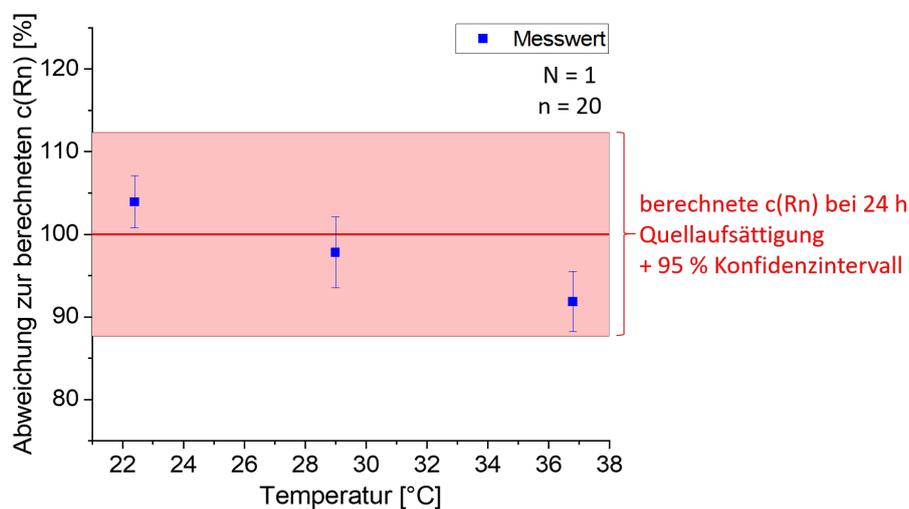
Technisch bedingt ist die niedrigste Temperatur, die stabil in der Radonkammer eingestellt werden kann, die Raumtemperatur, da eine Verringerung die wiederholte Zugabe von kühlem Wasser oder Eis voraussetzen würde. Dies würde immer wieder zu Temperatursprüngen führen und eine konstante Temperatureinstellung verhindern. Als höchste Expositionstemperatur wurden  $\approx 37 \text{ °C}$  als physiologische Körpertemperatur des Menschen gewählt.

Um sicherzustellen, dass auftretende Effekte durch Temperaturunterschiede und nicht durch die Luftfeuchtigkeit hervorgerufen werden, wurde die absolute Luftfeuchtigkeit während der Experimente vergleichbar eingestellt (siehe Tabelle 4.4). Die absolute Luftfeuchtigkeit wurde gering genug eingestellt, um Effekte der fehlerhaften Messung der Radonaktivitätskonzentration zu vermeiden (siehe Kapitel 4.1.5). Da technisch die relative Luftfeuchtigkeit nicht über die gesamte Experimentdauer konstant  $< 20 \%$  gehalten werden konnte, wurde dies bei der Auswahl zusätzlich berücksichtigt und folgende Einstellungen getestet:

**Tabelle 4.4.** Temperatur, relative Luftfeuchtigkeit (rH) und absolute Luftfeuchtigkeit (aH) während der Experimente zur Bestimmung des Temperatureinflusses auf die Verteilung der Radon-Zerfallsprodukte

Temperatur [°C]	rH [%]	aH [ $\frac{g}{cm^3}$ ]
$22,4 \pm 0,1$	$45,2 \pm 2,6$	$9,0 \pm 0,6$
$29,0 \pm 0,1$	$34,0 \pm 0,3$	$9,8 \pm 0,1$
$36,8 \pm 0,1$	$22,3 \pm 0,9$	$9,7 \pm 0,4$

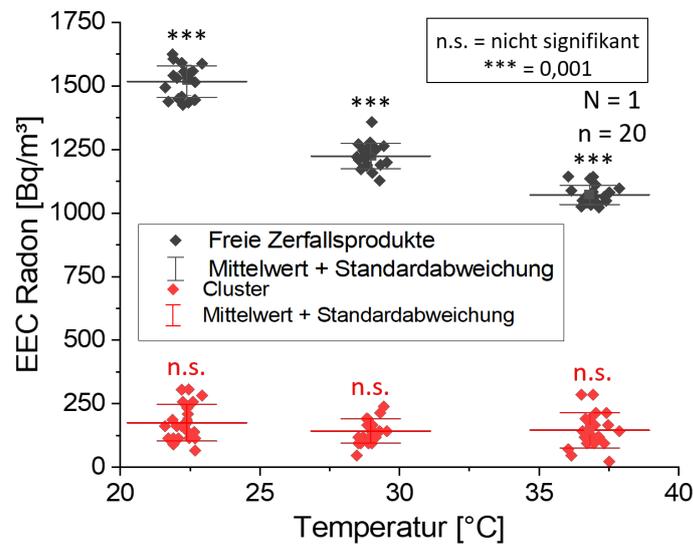
Wie in Abschnitt 4.1.5 beschrieben, wurden bei hoher Temperatur ( $T = 37,0^\circ\text{C}$ ) deutliche Abweichungen der gemessenen mit der berechneten Radonaktivitätskonzentration festgestellt. Um die Qualität der Daten sicherzustellen, wurde diese auch bei den Experimenten zur Bestimmung des Temperatureffekts verglichen und ein ähnlicher Trend beobachtet (siehe Abbildung 4.9).



**Abbildung 4.9.** Gemessene Radonaktivitätskonzentration bei unterschiedlichen Temperaturen (blau) und berechneter Wert mit 95 % Konfidenzintervall (rot) bei einer Quellaufladungszeit von  $t = 24\text{h}$

Die Radonaktivitätskonzentration geht nach Formel 4.1 direkt in die Größe der  $R\_EEC$  ein. Um den Einfluss einer potentiell fehlerbehafteten Messung der Radonaktivitätskonzentration zu vermeiden und da die Experimente bei gleicher Dauer der Quellaufladung ( $t = 24,000 \pm 0,007\text{h}$ ) durchgeführt wurden, wird im Folgenden nicht der  $R\_EEC$  sondern die  $EEC$  der freien Zerfallsprodukte und Cluster gezeigt.

Abbildung 4.10 zeigt, dass die freien Zerfallsprodukte signifikant absanken, wenn die Temperatur anstieg, wobei sie bei einem Temperaturanstieg von  $22,4 \pm 0,1^\circ\text{C}$  auf  $36,8 \pm 0,1^\circ\text{C}$  um  $30 \pm 4\%$  verringert wurden. Im Gegensatz dazu konnten keine signifikanten Unterschiede bei den Clustern bei unterschiedlichen Temperaturen gemessen werden.



**Abbildung 4.10.** EEC der freien Zerfallsprodukte (schwarz) und Cluster (rot) bei unterschiedlichen Temperaturen

Es konnte gezeigt werden, dass die Temperatur lediglich einen Einfluss auf die EEC der freien Zerfallsprodukte und nicht auf die der Cluster hat.

#### 4.1.7. Zusammenfassung Charakterisierung Radonkammer

Zusammenfassend konnten folgende Effekte in der Radonkammer festgestellt werden:

- **Reproduzierbarkeit:** Freie Zerfallsprodukte und Cluster im Gegensatz zu angelagerten Zerfallsprodukten reproduzierbar bei gleichen Expositionsparametern
- **Radonaktivitätskonzentration:** Freie Zerfallsprodukte und Cluster steigen linear mit der Radonaktivitätskonzentration
- **Ventilation:** Ventilation verringert die freien Zerfallsprodukte auf einen stabilen Wert ( $R\_EEC_{\text{Freie Zerfallsprodukte}} > 0$ ), Cluster zeigen ähnlichen Trend
- **Räumliche Verteilung:** Leichtes Absinken der freien Zerfallsprodukte mittig mit abnehmendem Abstand zum Kammerboden; am Kammerrand befinden sich signifikant weniger freie Zerfallsprodukte und Cluster
- **Relative Luftfeuchtigkeit:** Absinken der freien Zerfallsprodukte mit steigender relativer Luftfeuchtigkeit ( $T: 22,5 \pm 0,6 \text{ °C}$ ); Messfehler der Radonaktivitätskonzentration bei hoher Temperatur ( $T: 37,0 \pm 0,2 \text{ °C}$ )
- **Temperatur:** Absinken der freien Zerfallsprodukte bei höherer Temperatur

## 4.2. Aerosolgenerator

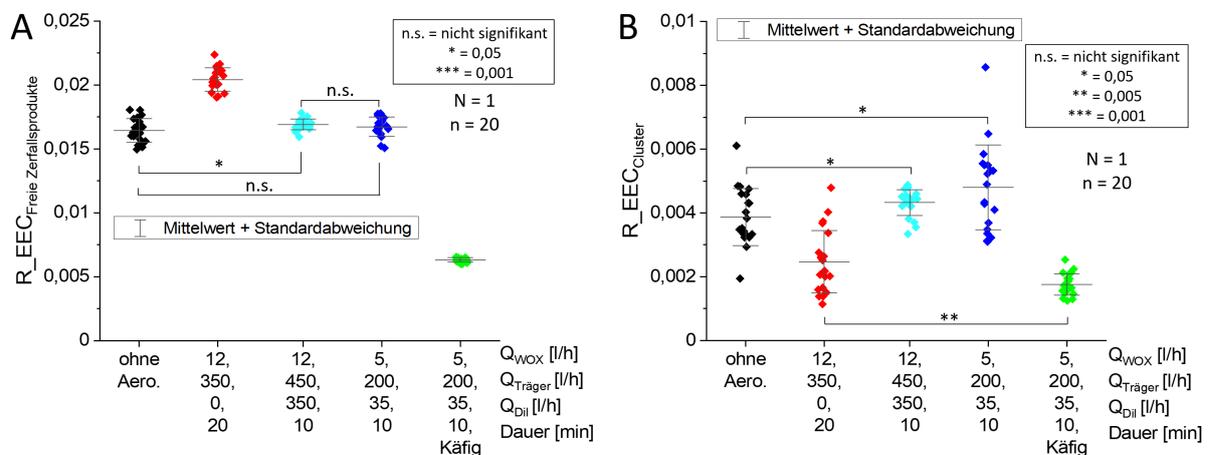
Der Aerosolgenerator (WOx-Generator Modell 7.860) erzeugt laut Herstellerangaben 1,2 nm große Primärpartikel und sollte dazu genutzt werden, den Anteil der freien Zerfallsprodukte in

der Radonkammer zu erhöhen, indem eine größere Menge an Nanopartikeln in der Luft vorhanden ist und die Zerfallsprodukte an diese anlagern. Hierfür wurden die in Kapitel 3.4 beschriebenen folgenden Einstellungen variiert:

1. Wolfram-Luft ( $Q_{WOx}$ )
2. Träger-Luft ( $Q_{Träger}$ )
3. Verdünnungsluft ( $Q_{Dil}$ )
4. Betriebsdauer des Aerosolgenerators

Eine Auflistung der verschiedenen getesteten Einstellungen ist in Anhang A.4 gezeigt. Die ein- gestellten Parameter entsprechen im weiteren Verlauf der oben gezeigten Reihenfolge. Zusätzlich wurden Experimente mit einem Käfig in der Radonkammer durchgeführt, um den Effekt der zusätzlichen Oberflächen in der Kammer zu überprüfen.

Es zeigte sich, dass der Wolframdraht bereits nach einmaliger Nutzung verbraucht war und aus- schließlich mit einem neuen Draht eine Veränderung in der Partikelgrößenverteilung der Zerfalls- produkte erreicht werden konnten. Im Folgenden werden aus Gründen der Übersichtlichkeit nur diejenigen Einstellungen gezeigt, bei denen eine Änderung in der Größenverteilung der Radon- Zerfallsprodukte gemessen wurde. Hierbei konnte allerdings keine reproduzierbare Zunahme der freien Zerfallsprodukte und der Cluster erzielt werden (siehe Abbildung 4.11).

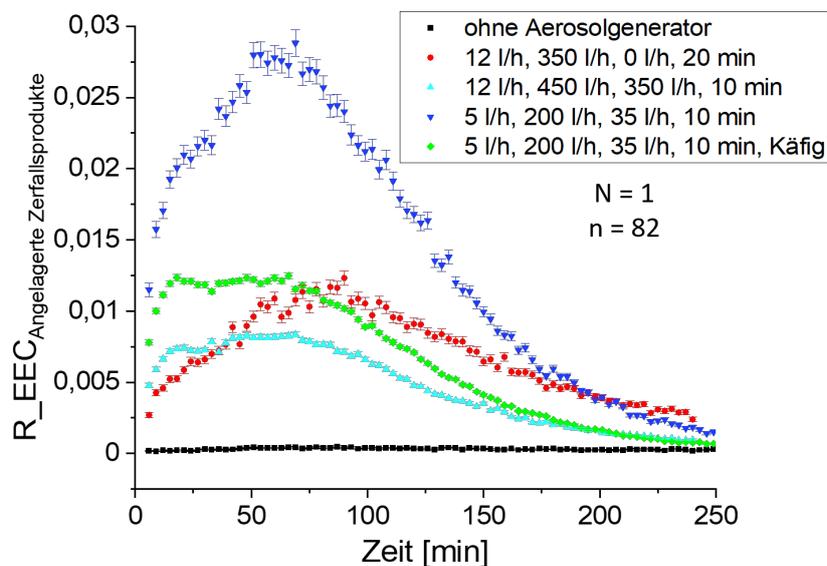


**Abbildung 4.11.**  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte (A) und Cluster (B) ohne Aerosolgenerator (ohne Aero.) im Vergleich mit unterschiedlich eingestellten Luftströmen des Aerosolgenerators (T:  $22,1 \pm 0,4$  °C, rH:  $25,1 \pm 5,6$  %), wenn nicht anders angegeben entspricht  $p < 0,001$

Ausschließlich bei der Einstellung ( $Q_{WOx} = 12 \frac{l}{h}$ ,  $Q_{Träger} = 35 \frac{l}{h}$ ,  $Q_{Dil} = 0 \frac{l}{h}$ , Dauer: 20 min) war bei einem Experiment eine Zunahme der freien Zerfallsprodukte messbar, wobei sie unter glei- chen Bedingungen nicht reproduzierbar war. Auffällig in diesem Experiment war die signifikante Verringerung der Cluster im Vergleich zur Exposition ohne Aerosol.

Bei Experimenten mit Käfig in der Radonkammer und der damit verbundenen Oberflächen- steigerung verringerten sich die freien Zerfallsprodukte und die Cluster signifikant (siehe Abbil- dung 4.11).

Im Gegensatz zu den kleineren Größenfraktionen (Freie Zerfallsprodukte, Cluster) waren signifikante Veränderungen der angelagerten Zerfallsprodukte messbar (siehe Abbildung 4.12), die im Gegensatz zu Experimenten ohne die Nutzung des Aerosolgenerators auch reproduzierbar waren. Es zeigte sich ein Anstieg zu Beginn der Exposition mit dem Maximum innerhalb der ersten 2 h, gefolgt von einem stetigen Absinken. Die höchste Ausbeute wurde bei der Einstellung ( $5 \frac{l}{h}$ ,  $200 \frac{l}{h}$ ,  $35 \frac{l}{h}$ , 10 min) erreicht. Bei diesen Einstellungen des Aerosolgenerator, unabhängig ob der Käfig in der Radonkammer platziert wurde oder nicht, waren mehr angelagerte Zerfallsprodukte als Cluster und freie Zerfallsprodukte vorhanden. Diese Art der Verteilung konnte ausschließlich mit Aerosolgenerator erreicht werden (blaue und grüne Datenpunkte Abbildung 4.12).



**Abbildung 4.12.**  $R_{EEC}$  der angelagerten Zerfallsprodukte während einer Exposition bei unterschiedlichen eingestellten Luftströmen des Aerosolgenerators ( $T: 22,1 \pm 0,4$  °C,  $rH: 25,1 \pm 25,7$  %)

### 4.3. Depositionsmessungen im Lungenmodell

Die Bestimmung des Einflusses verschiedener Expositionsparameter auf die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte ist nur der erste Schritt zur Risikobewertung der Radon-Exposition. Im nächsten Schritt sollte die Deposition der freien Zerfallsprodukte in einem idealisierten Lungenmodell experimentell bestimmt werden, da diese für den größten Teil der Lungendosis verantwortlich sind (siehe Abbildung 2.7). Außerdem sorgt die beschriebene Inhomogenität der Deposition im Bereich der Bifurkationen (siehe Abbildung 2.11) für eine lokal erhöhte Dosis, die einen enormen Einfluss auf die Risikobewertung hat.

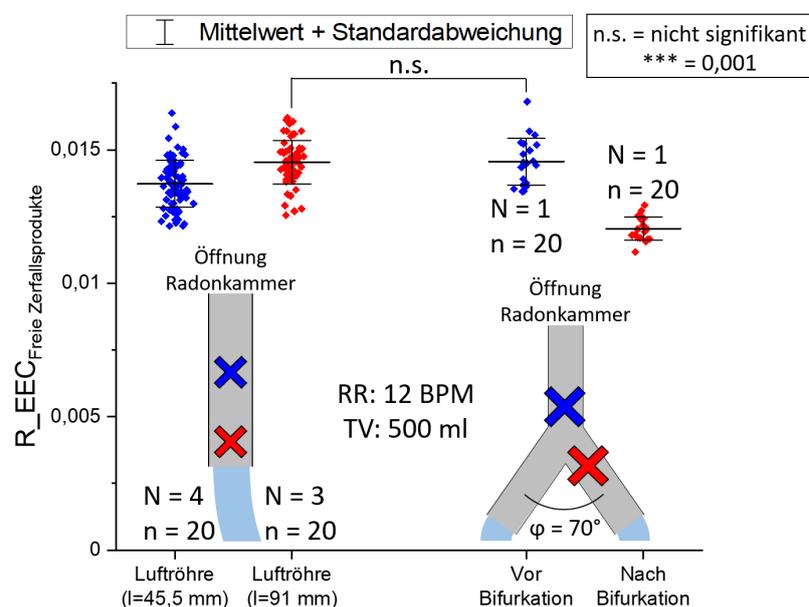
Die Experimente wurden ohne die Nutzung des Aerosolgenerators durchgeführt. Außerdem wurde, wenn nicht anders beschrieben, ein Luftstrom durch das jeweilige Modell mit einer Atemfrequenz (RR) von 12 Atemzügen pro Minute (BPM) und einem Atemzugvolumen (TV) von 500 ml gewählt und mit Hilfe des in Kapitel 3.5 beschriebenen Beatmungsgeräts umgesetzt. Diese Atemparameter entsprechen der Atmung im Ruhezustand (siehe Kapitel 2.5).

### 4.3.1. Deposition in Bifurkationen im Vergleich zu einem Hohlzylinder

Zur Validierung des neuen Messaufbaus wurde die Deposition in einer Bifurkation mit der im geraden Bereich der Luftröhre verglichen, um zu überprüfen, ob eine erhöhte Deposition in den Bifurkationen gemessen werden kann. Hierfür wurden die in Kapitel 3.5 beschriebenen Modelle der Luftröhre, die nur durch einen Hohlzylinder abgebildet wurde, und das Modell einer Bifurkation mit  $\varphi = 70^\circ$  genutzt.

Im Modell der Luftröhre wurde in einem Abstand von  $45,5 \pm 0,5$  mm und  $91 \pm 0,5$  mm von der zur Radonkammer gerichteten Öffnung (Öffnung Radonkammer) gemessen. In dem Bifurkationsmodell wurde vor und nach der Bifurkation gemessen (siehe Abschnitt 3.5).

Im Folgenden sind die Ergebnisse grafisch (siehe Abbildung 4.13) und tabellarisch (siehe Tabelle 4.5) dargestellt:



**Abbildung 4.13.**  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte gemessen in einem Modell der Luftröhre im Abstand von 45,5 mm zur Öffnung (blau) und in einem Abstand von 91 mm (rot) sowie Messung in einem Bifurkationsmodell vor (blau) und nach der Bifurkation (rot) mit einer Atemfrequenz (RR): 12 BPM und einem Atemzugvolumen (TV): 500 ml, hellblau: Anschluss Beatmungsgerät, (T:  $22,6 \pm 0,5$  °C, rH:  $47,7 \pm 2,8$  %), wenn nicht anders angegeben entspricht  $p < 0,001$

**Tabelle 4.5.** Ergebnisse der Messung des  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte in einem Modell der Luftröhre und in einem Bifurkationsmodell mit der berechneten Deposition

Modell	Messposition	$R_{EEC}$ Freie Zerfallsprodukte	Deposition
Luftröhre	l = 45,5 mm	$0,0137 \pm 0,0009$	$-0,00081 \pm 0,0018$ ( $-5,9 \pm 12,3$ %)
	l = 91 mm	$0,0145 \pm 0,0009$	
Bifurkation	Vor Bifurkation	$0,0146 \pm 0,0009$	$0,0025 \pm 0,0014$ ( $17,3 \pm 8,8$ %)
	Nach Bifurkation	$0,0121 \pm 0,0005$	

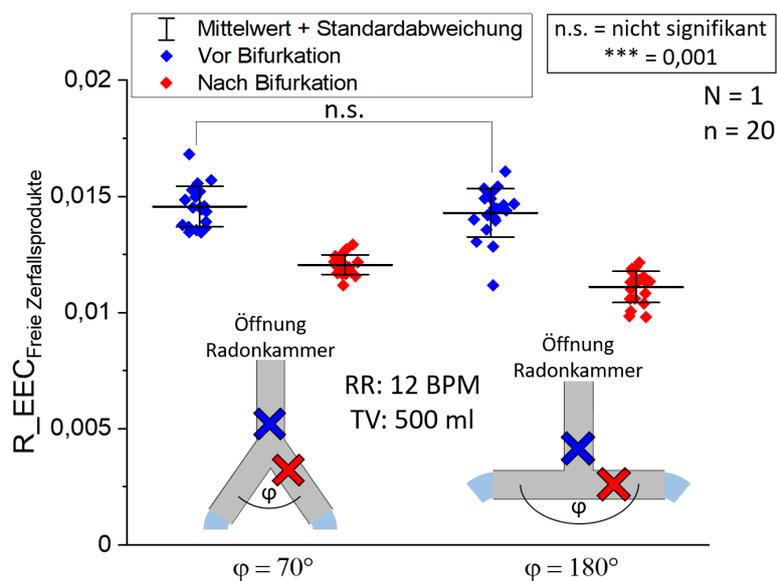
In dem Modell der Luftröhre wurde ein Anstieg des  $R\_EEC$  der freien Zerfallsprodukte um  $5,9 \pm 12,3 \%$  gemessen, hierauf wird in der Diskussion genauer eingegangen.

Im Gegensatz dazu konnte in der Bifurkation eine eindeutige Reduktion des  $R\_EEC$  der freien Zerfallsprodukte um  $17,3 \pm 8,8 \%$  gemessen werden, wobei hier die Deposition den Fehler des  $R\_EECs$  der freien Zerfallsprodukte deutlich überstieg.

Insgesamt zeigten die Daten, dass das entwickelte Modell dazu in der Lage ist, die erhöhte Deposition freier Zerfallsprodukte in Bifurkationen im Vergleich zu geraden Geometrien wie der Luftröhre abzubilden. Dies ermöglicht anschließend die Bestimmung der Deposition in Abhängigkeit des Bifurkationswinkels sowie der Atemfrequenz.

### 4.3.2. Bifurkationswinkel

Nach Etablierung des Modells sollte der Einfluss des Bifurkationswinkels ( $\varphi$ ) auf die Deposition untersucht werden. Dafür wurde das Modell mit einem nativen Bifurkationswinkel ( $\varphi_1 = 70^\circ$ ) mit einem Modell mit einem sehr großen Bifurkationswinkel ( $\varphi_2 = 180^\circ$ ) verglichen. Dies lieferte folgende Ergebnisse:



**Abbildung 4.14.**  $R\_EEC$  der freien Zerfallsprodukte gemessen vor (blau) und nach der Bifurkation (rot) mit unterschiedlichen Bifurkationswinkeln mit einer Atemfrequenz (RR): 12 BPM und einem Atemzugvolumen (TV): 500 ml, hellblau: Anschluss Beatmungsgerät, (T:  $22,3 \pm 0,2^\circ\text{C}$ , rH:  $46,4 \pm 2,2 \%$ ), wenn nicht anders angegeben entspricht  $p < 0,001$

**Tabelle 4.6.** Ergebnisse der Messung des  $R\_EEC$  der freien Zerfallsprodukte in zwei Bifurkationsmodellen mit unterschiedlichen Bifurkationswinkeln ( $\varphi$ ) mit der berechneten Deposition

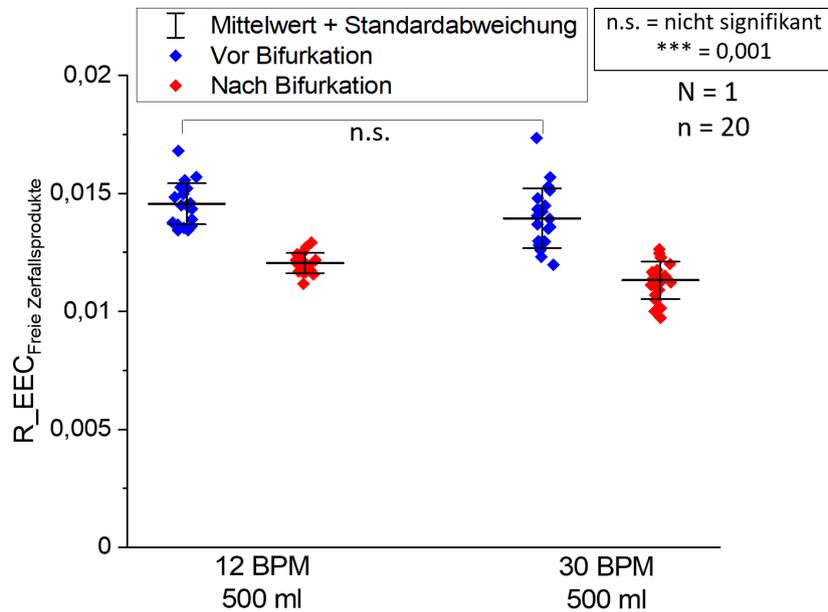
Modell	Messposition	$R\_EEC$ Freie Zerfallsprodukte	Deposition
$\varphi_1 = 70^\circ$	Vor Bifurkation	$0,0146 \pm 0,0009$	$0,0025 \pm 0,0014$ ( $17,3 \pm 8,8 \%$ )
	Nach Bifurkation	$0,0120 \pm 0,0005$	
$\varphi_2 = 180^\circ$	Vor Bifurkation	$0,0143 \pm 0,0011$	$0,0032 \pm 0,0018$ ( $22,3 \pm 11,8 \%$ )
	Nach Bifurkation	$0,0111 \pm 0,0007$	

Unabhängig vom Bifurkationswinkel wurde eine signifikante Verringerung des  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte gemessen, die  $17,3 \pm 8,8 \%$  bei  $\varphi_1 = 70^\circ$  und  $22,3 \pm 11,8 \%$  bei  $\varphi_2 = 180^\circ$  entsprach.

Die Messwerte vor der Bifurkation zeigten keine signifikant Unterschiede, im Gegensatz dazu war der  $R_{EEC}$  nach der Bifurkation bei einem Bifurkationswinkel von  $180^\circ$  signifikant geringer als bei  $70^\circ$ . Der Unterschied der Reduktion entsprach somit zwar  $5 \%$ , da die Ungenauigkeit der Einzelwerte diesen Wert jedoch überstieg, kann die höhere Deposition bei einem höheren Bifurkationswinkel nur als Trend angesehen werden.

### 4.3.3. Atemfrequenz

Zusätzlich zum Bifurkationswinkel wurde die Abhängigkeit der Deposition von der Atemfrequenz (RR) bestimmt. Hierbei wurde das Modell mit einem Bifurkationswinkel von  $\varphi = 70^\circ$  genutzt. Die Ergebnisse sind nachfolgend gezeigt:



**Abbildung 4.15.**  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte gemessen vor (blau) und nach der Bifurkation (rot) bei unterschiedlichen Beatmungsfrequenzen ( $T: 22,4 \pm 0,3^\circ\text{C}$ ,  $rH: 47,8 \pm 0,8 \%$ ), wenn nicht anders angegeben entspricht  $p < 0,001$

**Tabelle 4.7.** Ergebnisse der Messung des  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte in einem Bifurkationsmodell mit unterschiedlichen Atemfrequenzen mit der berechneten Deposition

Atemfrequenz	Messposition	$R_{EEC}$ Freie Zerfallsprodukte	Deposition
12 BPM	Vor Bifurkation	$0,0146 \pm 0,0009$	$0,0025 \pm 0,0014$ ( $17,3 \pm 8,8 \%$ )
	Nach Bifurkation	$0,0120 \pm 0,005$	
30 BPM	Vor Bifurkation	$0,0139 \pm 0,0013$	$0,0026 \pm 0,0021$ ( $17,3 \pm 14,5 \%$ )
	Nach Bifurkation	$0,0113 \pm 0,0008$	

Analog zu den Messungen bei unterschiedlichen Bifurkationswinkeln wurde auch bei den zwei getesteten Atemfrequenzen eine signifikant Deposition in der Bifurkation gemessen. Die Messdaten nach der Bifurkation bei unterschiedlicher Atemfrequenz unterschieden sich zwar signifikant (rote Datenpunkte Abbildung 4.15), die berechnete Differenz, die der Deposition entspricht, war jedoch prozentual betrachtet gleich.

Es konnte mit dem hier genutzten Modell keine Abhängigkeit der Deposition in Bifurkationen von der Atemfrequenz festgestellt werden.

### 4.4. Filterung von Radon-Zerfallsprodukten durch Masken

Im Strahlenschutz ist es nicht nur essentiell das Risiko zu kennen, sondern auch Maßnahmen zu treffen, um die Strahlenbelastung zu reduzieren (§ 8 (2) StrlSchG). Im Rahmen der COVID-19-Pandemie gehörten Gesichtsmasken zum alltäglichen Schutz und es sollte überprüft werden, ob diese einfache und kostengünstige Methode auch dazu in der Lage ist, die Strahlenbelastung durch Radon und seine Zerfallsprodukte zu verringern. Hierfür wurden die zu dem Experimentzeitpunkt in Deutschland erlaubten Maskentypen (FFP2 Maske, II R Maske/OP-Maske) getestet.

Die Experimente zur Bestimmung der Filterfunktion der Masken wurden wie beschrieben durchgeführt (siehe Kapitel 3.6) und anschließend die Radonaktivitätskonzentration, der  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte und der  $R_{EEC}$  der Cluster miteinander verglichen.

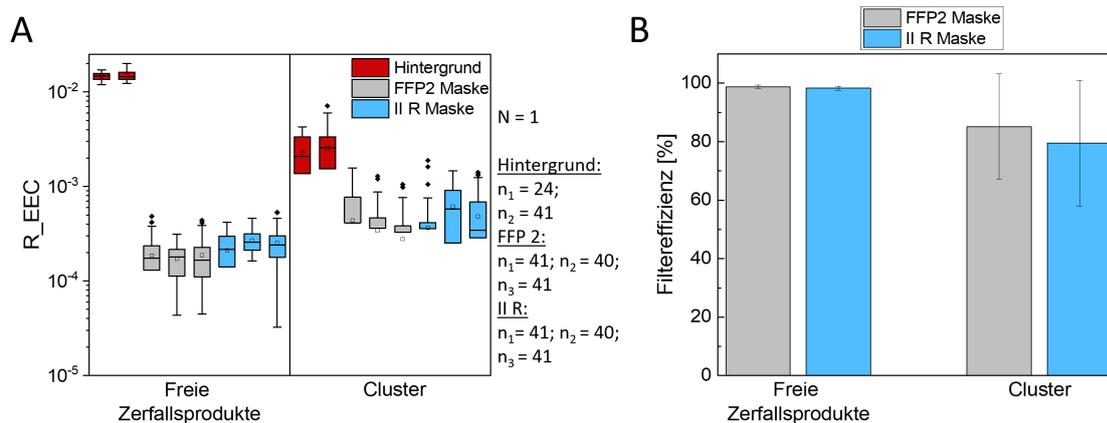
Die Ergebnisse der Experimente wurden in „Radon Progeny Adsorption on Facial Masks“ im *International Journal of Environmental Research and Public Health* [79] veröffentlicht.

Um die Qualität der Ergebnisse sicherstellen zu können, musste überprüft werden, ob der Luftstrom des Messgeräts durch die Maske reduziert wird. Dies hätte eine veränderte Abscheidecharakteristik zur Folge, die nicht mit der kalibrierten Charakteristik des Messgerätes übereinstimmen würde und die Messdaten wären nicht nutzbar.

Da keiner der beiden Maskentypen zu einer Veränderung des Luftstroms führte, konnte die filternde Wirkung gegenüber Radon und seinen Zerfallsprodukten mit dem Aufbau untersucht werden.

Um die Radon-Filterung zu testen, wurde der gemessene Wert der Radonaktivitätskonzentration jedes Experiments (mit und ohne Maske) mit der erwartbaren Radonaktivitätskonzentration (siehe Abbildung 3.2) verglichen, wobei keine Abweichungen außerhalb des Konfidenzintervalls festgestellt wurden. Die Masken sind dementsprechend nicht dazu in der Lage, Radon zu filtern.

Im nächsten Schritt wurden der  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte und der Cluster ausgewertet und auch hier die Ergebnisse mit und ohne Maske verglichen (siehe Abbildung 4.16A). Die Messungen zeigten eine deutliche Reduktion beider Größenfraktionen durch die Masken. Zusätzlich wurde die Filtereffizienz des jeweiligen Maskentyps bestimmt, wobei beide Masken eine fast vollständige Filterung der freien Zerfallsprodukte ermöglichten ( $> 98\%$ ) und eine Filterung von etwa  $80\%$  der Cluster erzielten (siehe Abbildung 4.16B).



**Abbildung 4.16.** Messung des  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte und Cluster mit und ohne Maske (A) und Filtereffizienz des jeweiligen Maskentyps (B), modifiziert nach [79], ( $T: 22,2 \pm 0,2 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $rH: 65,9 \pm 2,1 \%$ )

Die Ergebnisse zeigten, dass eine Maske zwar nicht dazu in der Lage ist, Radon zu filtern, allerdings können sie durch die fast vollständige Reduktion der Zerfallsprodukte die Strahlenbelastung trotzdem deutlich reduzieren. Hierbei ist es entscheidend, dass insbesondere im Bereich der Lunge die Dosis zu 95 % durch eingeatmete Zerfallsprodukte bestimmt wird [10], die effektiv von Masken gefiltert werden können.

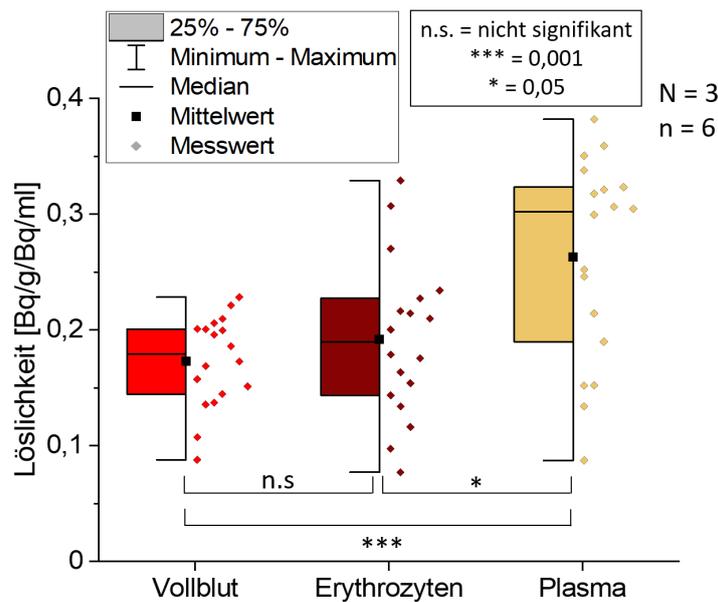
## 4.5. Löslichkeit von Radon in Blut und Blutkomponenten

Im Gegensatz zu den Radon-Zerfallsprodukten, die im Bereich der Lunge für den Hauptteil der Dosis verantwortlich sind, kann Radon selbst nach Inhalation über das Blut im gesamten Organismus verteilt werden.

Hierbei ist die Löslichkeit in Blut entscheidend, da diese bestimmt, wie viel Radon überhaupt im Körper verteilt werden kann. Zusätzlich wird diese zur Bestimmung von Verteilungskoeffizienten zwischen Blut und Gewebe benötigt, die wiederum essentiell zur Dosisberechnung mit Hilfe von biokinetischen Modellen sind (siehe Kapitel 2.2.2).

Zusätzlich sollten potentielle Bestandteile des Blutes identifiziert werden, die das Lösungsverhalten von Radon beeinflussen. Dafür wurden neben humanem Vollblut ebenfalls humanes Erythrozytenkonzentrat und humanes Blutplasma untersucht (siehe Abbildung 4.17). Wie in Kapitel 3.7.1 beschrieben, handelt es sich nicht um die reinen Blutbestandteile, da diese Zusätze zur Stabilisierung, Antikoagulation und Steigerung der Haltbarkeit enthalten.

Die Experimente der gezeigten Ergebnisse wurden zum Teil im Rahmen einer Bachelorarbeit von Oliver Palkowski durchgeführt und veröffentlicht [87].



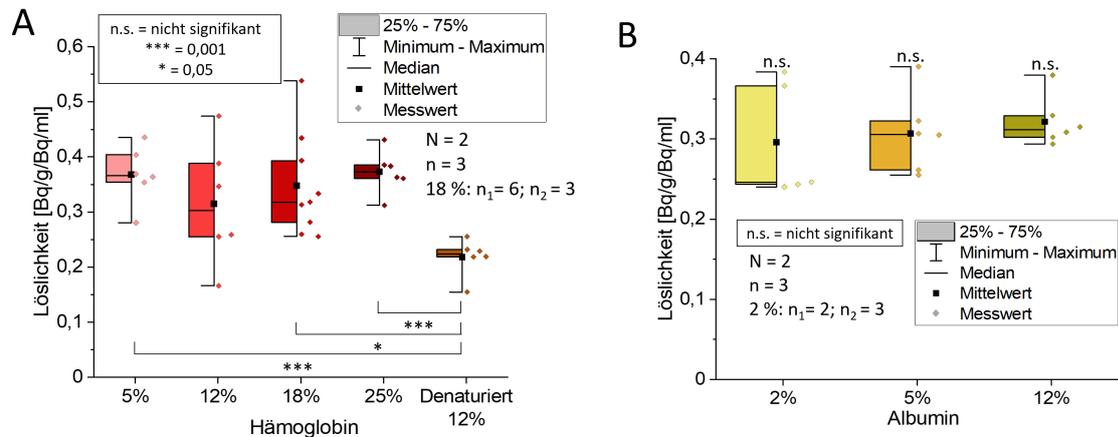
**Abbildung 4.17.** Löslichkeit von Radon in Vollblut, Erythrozyten und Plasma ( $T: 22,1 \pm 0,5 \text{ } ^\circ\text{C}$ ,  $rH: 76,5 \pm 2,8 \%$ ,  $c(\text{Rn}): 415 \pm 48 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ )

**Tabelle 4.8.** Mittelwert und Standardabweichung der Löslichkeit von Radon in Vollblut, Erythrozyten und Plasma ( $T: 22,1 \pm 0,5 \text{ } ^\circ\text{C}$ ,  $rH: 76,5 \pm 2,8 \%$ ,  $c(\text{Rn}): 415 \pm 48 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ )

Probe	Löslichkeit [ $\frac{\text{Bq}}{\text{g}} / \frac{\text{Bq}}{\text{ml}}$ ]
Vollblut	$0,17 \pm 0,04$
Erythrozyten	$0,19 \pm 0,07$
Plasma	$0,26 \pm 0,09$

Die Messungen zeigten keine signifikanten Unterschiede der Löslichkeit von Radon in Vollblut und Erythrozytenkonzentrat. Ausschließlich in Plasma wurde eine signifikant höhere Löslichkeit gemessen, wobei insbesondere die Experimente mit Erythrozytenkonzentrat und Plasma eine hohe Streuung der Werte zeigten.

Zusätzlich zu den humanen Blutproben wurde der Einfluss von den Blutproteinen Hämoglobin und Albumin, die jeweils den Hauptbestandteil der Erythrozyten beziehungsweise des Plasmas ausmachen, untersucht. Hierfür wurden verschiedene Konzentrationen des jeweiligen bovinen Proteins in VE-Wasser gelöst. Zusätzlich wurde eine 12 %-Hämoglobin-Lösung hitzedenaturiert und exponiert. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.18 gezeigt und die Experimente wurden zum Teil im Rahmen der Bachelorarbeit von Marie-Luise Heddrich durchgeführt und bereits veröffentlicht [81].



**Abbildung 4.18.** Löslichkeit von Radon in Hämoglobin-Lösungen verschiedener Konzentrationen sowie einer hitzedenaturierten 12%-Lösung (A) und Löslichkeit in Albumin-Lösungen verschiedener Konzentrationen (B), wenn nicht anders angegeben sind die Unterschiede nicht signifikant ( $p > 0,05$ ) (T:  $21,7 \pm 0,5$  °C, rH:  $71,8 \pm 3,4$  %,  $c(\text{Rn}): 377 \pm 39 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ )

**Tabelle 4.9.** Mittelwert und Standardabweichung der Löslichkeit von Radon in Hämoglobin-Lösungen verschiedener Konzentrationen sowie einer hitzedenaturierten 12%-Lösung und Löslichkeit in Albumin-Lösungen verschiedener Konzentrationen (T:  $21,7 \pm 0,5$  °C, rH:  $71,8 \pm 3,4$  %,  $c(\text{Rn}): 377 \pm 39 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ )

Protein	Konzentration	Löslichkeit [ $\frac{\text{Bq}}{\text{g}} / \frac{\text{Bq}}{\text{ml}}$ ]
Hämoglobin	5 %	$0,37 \pm 0,05$
	12 %	$0,31 \pm 0,11$
	18 %	$0,35 \pm 0,09$
	25 %	$0,37 \pm 0,04$
	12 % denaturiert	$0,22 \pm 0,04$
Albumin	2 %	$0,30 \pm 0,07$
	5 %	$0,31 \pm 0,05$
	12 %	$0,32 \pm 0,03$

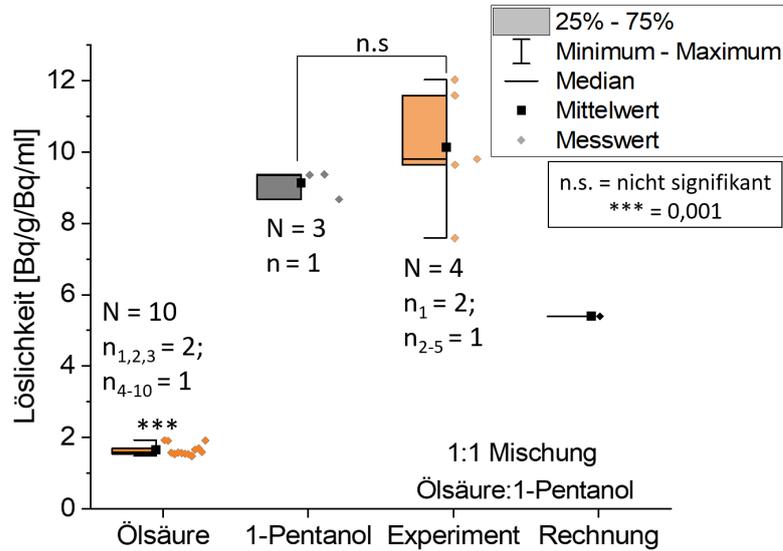
Weder in Hämoglobin noch in Albumin konnte eine Konzentrationsabhängigkeit der Radonlöslichkeit gemessen werden, außerdem bestanden keine Unterschiede zwischen den beiden Proteinen bei gleicher Konzentration. Lediglich die Hitzedenaturierung der Hämoglobin-Lösung führte zu einer signifikanten Verringerung der Löslichkeit von Radon.

Um die in Kapitel 2.2.2 beschriebene Additivität der Löslichkeit, die in den Blutproben nicht bestätigt werden konnte, in einem einfacheren System zu überprüfen, wurde abschließend die Löslichkeit von Radon in Ölsäure, 1-Pentanol, sowie einer 1:1 Mischung aus den beiden Flüssigkeiten bestimmt.

Die Ergebnisse zeigten, dass die Löslichkeit in der Mischung aus den beiden Flüssigkeiten etwa genauso hoch war wie in reinem 1-Pentanol (siehe Abbildung 4.19 und Tabelle 4.10). Wurde der Wert unter Annahme der Additivität der Löslichkeit (S) nach Formel 4.4 berechnet, wie dies in Modellen der ICRP zur Dosisbestimmung durchgeführt wird (siehe Abschnitt 2.2.2), zeigte sich

ein deutlicher Unterschied. Der experimentell bestimmte Wert war etwa doppelt so groß wie der berechnete Wert unter Annahme der additiven Löslichkeit.

$$S_{\text{Rechnung}} = 0,5 \cdot S_{\text{Ölsäure}} + 0,5 \cdot S_{1-\text{Pentanol}} \quad (4.4)$$



**Abbildung 4.19.** Löslichkeit von Radon in Ölsäure, 1-Pentanol und einer 1:1 Mischung aus beiden Stoffen sowie die nach Formel 2.19 berechneten Löslichkeit (T:  $22,0 \pm 0,5$  °C, rH:  $50,9 \pm 8,4$  %,  $c(\text{Rn}): 352 \pm 91 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ , 3 Experimente Ölsäure in kleiner Kammer: T:  $22,2 \pm 0,4$  °C, rH:  $59,2 \pm 3,2$  %,  $c(\text{Rn}): 2920 \pm 670 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ )

**Tabelle 4.10.** Mittelwert und Standardabweichung der Löslichkeit von Radon in Ölsäure, 1-Pentanol und einer 1:1 Mischung aus Ölsäure und 1-Pentanol sowie die nach Formel 2.19 berechneten Löslichkeit

Art der Daten	Probe	Löslichkeit [ $\frac{\text{Bq}}{\text{g}} / \frac{\text{Bq}}{\text{ml}}$ ]
Experiment	Ölsäure	$1,65 \pm 0,16$
	1-Pentanol	$9,13 \pm 0,33$
	1:1 Mischung Ölsäure:1-Pentanol	$10,13 \pm 1,58$
Rechnung	1:1 Mischung Ölsäure:1-Pentanol	5,39

In der hier untersuchten Mischung aus zwei Flüssigkeiten konnte die Additivität der Löslichkeiten der Einzelstoffe experimentell nicht bestätigt werden, mögliche Ursachen für diese Beobachtung werden in der Diskussion detaillierter betrachtet.

Im Rahmen dieser Arbeit konnten folgende Ergebnisse zur Löslichkeit von Radon experimentell gemessen werden:

- Humane Blutkomponenten (Vollblut, Erythrozytenkonzentrat, Plasma):
  - Signifikant höhere Löslichkeit in Plasma als in Vollblut und Erythrozytenkonzentrat
  - Keine signifikanten Unterschiede zwischen Vollblut und Erythrozytenkonzentrat
- Protein-Lösungen (Hämoglobin, Albumin):
  - Keine Konzentrationsabhängigkeit der Löslichkeit unabhängig vom Protein
  - Keine signifikanten Unterschiede der Löslichkeit zwischen den beiden Proteinen bei gleicher Konzentration
  - Signifikant geringere Löslichkeit in hitzedenaturierter Hämoglobin-Lösung (12%)
- 1-Pentanol und Ölsäure:
  - Experimentell gemessene Löslichkeit fast doppelt so groß wie die berechnete Löslichkeit unter Annahme der Additivität

## 5. Diskussion

Die vorgestellten Ergebnisse wurden in Experimenten in einer zylinderförmigen Radonkammer mit einem Volumen von 50 l erzielt, die konstruiert wurde, um die Exposition von biologischen Proben (Gewebe, Zellen, Tiere) unter vergleichbaren Bedingungen wie während der Radontherapie nachzustellen [74]. Die Parameter Radonaktivitätskonzentration, Temperatur, Luftfeuchtigkeit und CO<sub>2</sub>-Konzentration sind hierbei einstellbar. Im Gegensatz dazu kann die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte nur indirekt durch Veränderung der nachfolgend genannten Parameter reguliert werden. Es sollte zum einen der Einfluss verschiedener Expositionsparameter bestimmt werden, zum anderen wurde mit Hilfe eines Aerosolgenerators versucht, die Größenverteilung der Zerfallsprodukte zu manipulieren. Nachfolgend werden die Ergebnisse diskutiert, um zum einen die beobachteten Effekte zu erklären und um zum anderen potentielle Stärken und Schwächen des Expositionssystems herauszuarbeiten.

### 5.1. Charakterisierung der Radonkammer

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Einfluss verschiedener Parameter auf die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte in einer Radonkammer untersucht. Dies bietet im Vergleich zu Messungen in der Umwelt oder in Gebäuden den Vorteil, dass einzelne Parameter in definiertem Maße variiert werden können und somit eine eindeutige Zuordnung zwischen dem Parameter und potentiellen Effekten möglich ist.

Messungen in der Umwelt sind offensichtlich von den äußeren Witterungsbedingungen wie beispielsweise Niederschlag, Temperatur, relativer Luftfeuchtigkeit und Wind abhängig, wobei sich diese häufig auch gegenseitig beeinflussen. Beispielsweise ist die relative Luftfeuchtigkeit von der Temperatur und dem Druck in dem System abhängig, da sie dem Verhältnis zwischen tatsächlichem Wasserdampf in der Luft und dem maximal möglichen Wasserdampf in der Luft entspricht. Bei höherer Temperatur kann die Luft mehr Wasser aufnehmen, dies führt bei gleichbleibender Wassermenge in der Luft dann zu einer geringeren relativen Luftfeuchtigkeit [88]. Diese Abhängigkeiten erschweren die Zuordnung beobachteter Phänomene zu einem bestimmten Parameter und erfordern außerdem die Messung verschiedenster Umweltparameter. Yu et al. fanden zusätzlich in Wohnräumen [89] und Büros [90] eine Abhängigkeit der PAEK der Radon-Zerfallsprodukte vom Niederschlag in der unmittelbaren Umgebung der Gebäude und der baulichen Umgebung wie beispielsweise Kindergärten, Parks oder Straßen, die an die Gebäude angrenzen. Dies zeigt, dass die Einflussfaktoren vielschichtig sind und nicht so offensichtlich wie dies beispielsweise bei Witterungsbedingungen der Fall ist. Zusätzlich ist die Radonaktivitätskonzentration in der Umwelt ebenfalls von verschiedenen Faktoren wie der Tageszeit, Jahreszeit und der Emanation von Radon aus dem Boden abhängig, wobei letztere von vielen weiteren Parametern beeinflusst wird. Zu den Einflussfaktoren zählen unter anderem die Temperatur der Erde und der Umgebungsluft, der Luftdruck und auch der Wind [91].

Die Experimente in der Radonkammer konnten unter kontrollierten Bedingungen durchgeführt werden und ermöglichen daher die eindeutige Zuordnung von beobachteten Effekte zu dem variierten Parameter. Es muss allerdings auch festgehalten werden, dass die Dimensionen der Ra-

donkammer deutlich geringer sind, als Wohn- oder Arbeitsräume und die Geometrie Einfluss auf die Ablagerung der Zerfallsprodukte haben kann. Dies zeigt sich deutlich im F-Faktor. Während dieser von der ICRP im Bereich von  $F = 0,2-0,4$  [10] angenommen wird, liegt er in der Radonkammer im radioaktiven Gleichgewicht um den Faktor 10–20 niedriger ( $F_{\text{Radonkammer}} \approx 0,02$ ). Außerdem wurden die Experimente mit einer höheren Radonaktivitätskonzentration durchgeführt verglichen mit den durchschnittlichen Werten in der Umwelt (Vergleich Abbildung 2.3). Dies verbessert allerdings die Zählraten des Messgeräts. Es ist dennoch anzunehmen, dass die Ergebnisse bei der Radonaktivitätskonzentration, die als Grundeinstellung genutzt wurde ( $\approx 95 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ ), repräsentativ sind. Es kann angenommen werden, dass beobachtete Effekte auch bei niedrigeren oder höheren Radonaktivitätskonzentrationen das gleiche Verhalten zeigen. Um dies jedoch sicherzustellen, wurde das Verhalten der Radon-Zerfallsprodukte in Abhängigkeit der Radonaktivitätskonzentration gemessen.

### 5.1.1. Reproduzierbarkeit

Die Reproduzierbarkeit der Verteilung der Radon-Zerfallsprodukte unter gleichbleibenden Bedingungen ist essentiell für die weiteren Experimente, denn nur so können Veränderungen in der Größenverteilung mit den Expositionsparametern korreliert werden. Während die freien Zerfallsprodukte und Cluster reproduzierbar waren, zeigten die angelagerten trotz gleicher Bedingungen unterschiedliche EEC (siehe Kapitel 4.1.1). Diese Größenfraktion umfasst alle Zerfallsprodukte im Bereich von  $100 \text{ nm}-20 \mu\text{m}$  und erstreckt sich somit über drei Größenordnungen. Sie entstehen durch die Anlagerung an die in der Luft vorhandenen Aerosolpartikel und ihre Depositionsgeschwindigkeit durch Sedimentation ist von ihrem Radius abhängig (siehe Formel 2.26). Veränderungen in der Größenverteilung der vorhandenen Aerosolpartikel in der Luft können dementsprechend zu einer Variation der angelagerten Zerfallsprodukte führen. Die Luft in der Radonkammer entspricht der Laborluft und der Druckluft, die zur Einstellung der relativen Luftfeuchtigkeit genutzt wird. Beide können dementsprechend zu einer Veränderung der Aerosolgrößenverteilung in der Radonkammer beitragen und damit auch die Größenverteilung der angelagerten Zerfallsprodukte beeinflussen. Die Laborluft wird mindestens acht mal stündlich komplett getauscht, wobei die relative Luftfeuchtigkeit von den äußeren Bedingungen abhängt und zwischen 40–60 % liegt. Außerdem wird diese doppelt gefiltert und mindestens 80 % der Partikel im Größenbereich  $0,3-1 \mu\text{m}$  dadurch entfernt. Dennoch kann die Laborluft durch das Öffnen der Türen beeinflusst werden. Die verwendete Druckluft enthält lediglich  $0,01 \frac{\text{mg}}{\text{m}^3}$  Reststaub einer Größe  $\leq 0,01 \mu\text{m}$  sowie einen minimalen Anteil an Restöl  $\leq 0,015 \frac{\text{mg}}{\text{m}^3}$ . Dennoch kann sie durch Agglomeration der Reststaubpartikel zu einer Steigerung der Aerosolpartikel im Bereich der angelagerten Zerfallsprodukte beitragen.

Um die gleiche relative Luftfeuchtigkeit in der Radonkammer einzustellen, musste diese für die verschiedenen Experimente in unterschiedlichem Maße reguliert werden, da der Ausgangswert der relativen Luftfeuchtigkeit nach Verschluss der Kammer nicht immer gleich war. Sie wurde teilweise erhöht, wobei dies mit Hilfe von Druckluft und Wasser, das durch einen Verdampfer in die Gasphase gebracht wird, umgesetzt wurde. Bei einigen Experimenten musste die relative Luftfeuchtigkeit durch Spülen der Kammer mit reiner Druckluft abgesenkt werden. Des Weiteren variierte die jeweilige Dauer der unterschiedlichen Spülvorgänge. Diese beiden interexperimentellen Unterschiede können zu einer variierenden Aerosolgrößenverteilung zwischen den Experimenten führen, die dann einen direkten Einfluss auf die angelagerten Zerfallsprodukte hat.

Den Effekt einer variierenden Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte wurde von Morawska und Jamriska in Experimenten in einer größeren Radonkammer ebenfalls beobachtet. Trotz Einleiten von Tabakrauch mit einer relativ konstanten Partikelgröße, wurde die Verteilung der

Radon-Zerfallsprodukte durch andere Aerosole in der Testkammer beeinflusst und die Größenverteilung war zwischen den Experimenten sehr unterschiedlich [57].

### 5.1.2. Radonaktivitätskonzentration

Die Messung der freien Zerfallsprodukte und Cluster zeigte jeweils einen linearen Anstieg mit der Radonaktivitätskonzentration in dem gemessenen Bereich ( $c(\text{Rn}) \approx 70 - 530 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$ ). Die angelagerten Zerfallsprodukte variierten ohne erkennbares Muster, wobei dieser Effekt, wie bereits beschrieben, auch bei gleicher Radonaktivitätskonzentration zu beobachten war (siehe Kapitel 4.1.2). Insgesamt ist der Anteil der angelagerten Zerfallsprodukte an den gesamten Zerfallsprodukten sehr gering und ihre EEC ist mindestens eine Größenordnung kleiner als die der freien Zerfallsprodukte. Die Messfehler der freien Zerfallsprodukte und Cluster sind zusammen größer als die Messwerte der angelagerten Zerfallsprodukte. Dies führt dazu, dass die angelagerten Zerfallsprodukte die Berechnung des F-Faktors (siehe Formel 2.33) so gering beeinflussen, dass ein konstanter F-Faktor berechnet werden kann ( $F = (190 \pm 8) \cdot 10^{-4}$ ). Die Gesamtmenge an Radon-Zerfallsprodukten in der Radonkammer steigt linear mit der Radonaktivitätskonzentration an, wobei der Anteil der angelagerten Zerfallsprodukte vernachlässigbar gering ist. Chu und Liu bestimmten die Depositionsgeschwindigkeit der freien Zerfallsprodukte in einem Radonraum ( $V = 23 \text{ m}^3$ ) und stellten hierbei eine Abhängigkeit von der Radonaktivitätskonzentration fest, die allerdings nur im Bereich von  $c(\text{Rn}) < 10 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$  messbar war. Dieser Anstieg ist auf die höhere Ionisationsrate durch den Zerfall von Radon zurückzuführen, die wiederum zu einer höheren Neutralisation der Radon-Zerfallsprodukte und damit zu einem höheren Diffusionskoeffizienten führt. Erreicht die Radonaktivitätskonzentration jedoch einen Schwellenwert, dann sind alle Zerfallsprodukte neutralisiert und die Depositionsgeschwindigkeit steigt nicht mehr an. Dies sorgte für einen konstanten F-Faktor im Bereich von  $c(\text{Rn}) > 10 \frac{\text{kBq}}{\text{m}^3}$  [92]. Dieser Anstieg im Bereich geringerer Radonaktivitätskonzentration wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter untersucht, da hier auch zu beachten ist, dass aufgrund des niedrigeren F-Faktors in den hier durchgeführten Experimenten die Zählraten deutlich geringer wären und die Auswertung erschweren würden. Der Einfluss der angelagerten Zerfallsprodukte kann aufgrund ihres geringen Anteils vernachlässigt werden. In früheren Experimenten in der gleichen Radonkammer wurde die deponierte Aktivität der Zerfallsprodukte in einem luftdurchströmten Filtersystem gemessen, wobei hier davon auszugehen war, dass alle Größenfraktionen im Filter zurückbleiben. Abgesehen von Schwankungen bei niedriger relativer Luftfeuchtigkeit, wurde auch hier ein linearer Zusammenhang gemessen [29]. Messungen in Büroräumen und Wohnungen in Hongkong zeigten ebenfalls einen linearen Zusammenhang zwischen Radonaktivitätskonzentration und der EEC der Zerfallsprodukte [89, 90]. Die ICRP nimmt bei der Unterscheidung von Expositionsszenarien jeweils einen festen F-Faktor an und geht dementsprechend ebenfalls davon aus, dass die Gesamtmenge an Zerfallsprodukten linear mit der Radonaktivitätskonzentration ansteigt [10].

Insgesamt stimmen die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Daten mit beschriebenen Beobachtungen in der Literatur überein. Der genutzte experimentelle Aufbau bietet daher gute Voraussetzungen für die Untersuchung weiterer Einflussfaktoren auf die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte.

### 5.1.3. Ventilation

Das Einschalten des Ventilators sorgt für eine Luftzirkulation innerhalb der Radonkammer. Diese führt zu einer Reduktion der freien Zerfallsprodukte, wobei sich ein stabiler Wert einstellt und die freien Zerfallsprodukte nicht komplett eliminiert werden. Der gleiche Trend ist für die Cluster

erkennbar, wobei die Fehler der einzelnen Messwerte deutlich höher sind und daher ungenauere Ergebnisse liefern (siehe Kapitel 4.1.3).

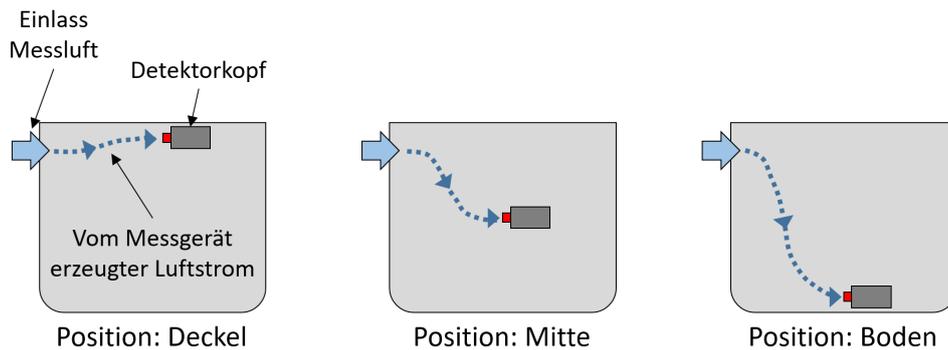
Leung et al. haben in einer kleineren Radonkammer (281) im radioaktiven Gleichgewicht ebenfalls eine Reduktion der freien Zerfallsprodukte durch Ventilation gemessen und begründen dies mit einer höheren Depositionsgeschwindigkeit. Im Gegensatz dazu konnten sie keinen Effekt auf die angelagerten Zerfallsprodukte durch Ventilation feststellen [93].

In einer größeren Radonkammer (1611) stellte Cheng eine höhere Partikeldeposition im Größenbereich von  $\approx 1\text{--}100$  nm fest und auch er konnte keinen Effekt auf die Deposition größerer Partikel messen [94]. Er begründet die höheren Depositionsraten mit der zusätzlichen turbulenten Diffusion, die auf die Partikel wirkt. Auch Porstendörfer beschreibt die turbulente Diffusion als zusätzlichen Einflussfaktor auf das Verhalten der freien Zerfallsprodukte innerhalb turbulenter Strömungen. Er geht davon aus, dass diese ab einem gewissen Grad der Turbulenz dominant gegenüber der Brown'schen Diffusion ist [44].

Die hier gezeigten Messungen zeigen den gleichen Trend, wobei keine Aussagen über größere Partikel ( $> 100$  nm) möglich sind. Überträgt man diese Ergebnisse auf die Nutzung von Ventilatoren zur Reduktion der Strahlenbelastung durch Radon-Zerfallsprodukte, kann diese zwar verringert werden, da die freien Zerfallsprodukte allerdings nicht vollständig eliminiert werden, besteht dennoch ein Restrisiko. Basierend auf den Messungen von Leung et al. und Cheng ist jedoch davon auszugehen, dass eine höhere Ventilation auch zu einer geringeren EEC der freien Zerfallsprodukte führt. Da die Ventilation in der genutzten Radonkammer nicht variiert werden kann, sondern lediglich zwischen den Zuständen „Ventilation ein“ und „Ventilation aus“ gewechselt werden kann, war eine Überprüfung dieser Hypothese nicht möglich.

### 5.1.4. Räumliche Verteilung

Die Radonaktivitätskonzentration zeigte an unterschiedlichen Positionen innerhalb der Radonkammer keine signifikanten Abweichungen von den erwarteten Werten (siehe Kapitel 4.1.4). Da Luft eine geringere Dichte als Radon ( $\rho_{Luft} = 1,204 \frac{g}{l} < \rho_{Radon} = 9,73 \frac{g}{l}$  [95]) hat, hätte dies zu einer ungleichmäßigen Verteilung, hinsichtlich des Abstandes des Detektorkopfes zum Kammerboden, führen können. Allerdings führt die Nutzung des Messgerätes im kontinuierlichen Messmodus zu einer dauerhaften Luftzirkulation innerhalb der Radonkammer. Die Luft wird mit einem Volumenstrom von  $1,50 \pm 0,05 \frac{l}{min}$  an der Vorderseite des Detektorkopfes angesaugt, durch das Gerät gepumpt und durch einen Schlauch, der im oberen Bereich der Radonkammer angeschlossen ist, wieder in die Kammer zurückgeleitet. Diese dauerhafte Bewegung führt zu einer dauerhaften Luftzirkulation und zu einer gleichmäßigen Verteilung von Radon innerhalb der Kammer (siehe Abbildung 5.1).



**Abbildung 5.1.** Luftstrom in der Radonkammer, der je nach Positionierung des Detektorkopfes (Deckel, Mitte, Boden) durch das Messgerät erzeugt wird; die Messluft wird am Detektorkopf (rot) angesaugt, durch das Messgerät gepumpt und am Lufteinlass (hellblau) zurück in Radonkammer geleitet

Zusätzlich kann es durch Konvektion zur weiteren Vermischung kommen, wobei dieser Effekt im Vergleich zur Luftströmung durch das Messgerät zu vernachlässigen ist. Die Temperatur im Inneren der Radonkammer entsprach während der Versuchsreihe zur Bestimmung der räumlichen Verteilung der Raumtemperatur und wurde zusätzlich durch das umliegende Wasserbad stabilisiert. Es sind daher keine großen Temperaturunterschiede zu erwarten, wobei diese nicht komplett ausgeschlossen werden können.

Die freien Zerfallsprodukte sinken mit abnehmendem Abstand zum Kammerboden ab und auch die Cluster zeigen einen ähnlichen Trend, wobei hier die Messwerte nicht alle signifikant unterschiedlich sind (siehe Kapitel 4.1.4). Eine mögliche Ursache für das Absinken der Zerfallsprodukte mit abnehmendem Abstand zum Kammerboden kann die beschriebene Luftzirkulation durch das Messgerät sein. Je niedriger der Detektorkopf positioniert wird, desto größer ist der Abstand zwischen eingesaugter Luft an der Vorderseite des Detektorkopfes und der Position an der die Luft zurück in die Radonkammer geführt wird. Dies sorgt für einen Luftstrom, der in Richtung des Kammerbodens gerichtet ist und am stärksten ist, wenn der Detektorkopf direkt am Boden platziert wird. Dies könnte dafür sorgen, dass es analog zu den Beobachtungen bei Ventilation zu einer Reduktion insbesondere der freien Zerfallsprodukte kommt. Knutsen et al. beobachteten im Gegensatz dazu in einem Raum eine höhere Deposition der Zerfallsprodukte an der Decke als am Boden. Ihre Erklärung dafür sind unterschiedliche Geschwindigkeiten der Luft [96]. In den hier durchgeführten Experimenten ist die größte Verwirbelung vermeintlich bei niedrigster Detektorkopfposition, somit schließen sich die beiden beobachteten Phänomene nicht aus.

Beide Größenfraktionen sind an der Seite der Kammer in einem Abstand von 0,5 cm zur Kammerwand signifikant verringert. Analog zur Reduktion bei abnehmender Höhe kann dies durch verstärkte Turbulenzen der Luft verursacht werden. Rudnick und Maher haben zusätzlich angenommen, dass es zu einer Reduktion der Radon-Zerfallsprodukte ohne äußere Einflüsse wie Ventilation in einer Grenzschicht zu Wänden kommt. Zwar liegt diese Grenzschicht in deren Experimenten im Größenbereich von weniger als einem Millimeter, ihre Dicke wird jedoch von der Geometrie der Probenkammer, der Anlagerungsrate, dem Anteil der freien Zerfallsprodukte und der Diffusionskonstanten beeinflusst [56]. Unterschiede in den Parametern können dazu beitragen, dass in den hier durchgeführten Experimenten die Grenzschicht größer ist und somit weniger Zerfallsprodukte am Kammerrand vorhanden sind. Die Schichtdicke steigt mit dem An-

teil an freien Zerfallsprodukten, welcher in den hier durchgeführten Experimenten deutlich höher ist als bei den Experimenten von Rudnick und Maher.

### 5.1.5. Relative Luftfeuchtigkeit

Die freien Zerfallsprodukte sanken linear mit steigender relativer Luftfeuchtigkeit ab, während die Cluster keinen eindeutigen Trend zeigten (siehe Kapitel 4.1.5). Es waren keine Zusammenhänge zwischen einer höheren relativen Luftfeuchtigkeit und einem Anstieg der angelagerten Zerfallsprodukte erkennbar. Die Reduktion der EEC der anderen Größenfraktionen entsteht also durch eine erhöhte Ablagerung an Oberflächen und nicht durch die Anlagerung der Zerfallsprodukte an dem zusätzlich vorhandenen Wasserdampf in der Radonkammer. Die relative Luftfeuchtigkeit entspricht dem Verhältnis des Wasserdampfes in der Luft im Vergleich zum maximal möglichen Wasserdampf, den die Luft ohne Kondensation aufnehmen kann. Dieser maximale Wert und dementsprechend auch die relative Luftfeuchtigkeit sind abhängig von der Umgebungstemperatur. Da die Experimente in dieser Arbeit bei gleicher Temperatur durchgeführt wurden ( $T = 22,5 \pm 0,6 \text{ }^\circ\text{C}$ ), kann ein Temperatureffekt auf die Werte der relativen Luftfeuchtigkeit ausgeschlossen werden.

Yu et al. beobachteten eine Reduktion der gesamten Radon-Zerfallsprodukte in Gebäuden. Sie gehen davon aus, dass der erhöhte Wassergehalt in der Luft zu einer Reduktion der Aerosole in der Luft führt und somit auch die Radon-Zerfallsprodukte reduziert [89]. Diese Beobachtung scheint jedoch eher auf eine Reduktion der angelagerten Zerfallsprodukte zurückzuführen zu sein, wohingegen die hier durchgeführten Experimente die Reduktion der freien Zerfallsprodukte zeigen. Ein gegensätzlicher Trend wurde von Singh et al. [55] gemessen, die einen Anstieg der Zerfallsprodukte mit steigender relativer Luftfeuchtigkeit in der Umwelt feststellten. Hierbei stellten sie ebenfalls eine Korrelation zwischen relativer Luftfeuchtigkeit und Temperatur fest und schlussfolgerten, dass der beobachtete Effekt aufgrund der Temperaturvariation entsteht. Dies zeigt deutlich, wie wichtig eine unabhängige Variation einzelner Parameter ist, da sonst eine Zuordnung zwischen Parametervariation und Effekt erschwert wird. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente bieten den Vorteil, dass die relative Luftfeuchtigkeit variiert werden konnte und die Temperatur konstant war. Die gemessene Reduktion der freien Zerfallsprodukte ist dementsprechend durch den Anstieg der relativen Luftfeuchtigkeit bedingt.

In Experimenten von Chu und Lui wurde ein steigender F-Faktor mit steigender relativer Luftfeuchtigkeit gemessen. Gleichzeitig sinkt die Depositionsgeschwindigkeit für freie Zerfallsprodukte mit Feuchtigkeitsanstieg. Sie begründen dies damit, dass der höhere Anteil an Wassermolekülen in der Luft eine höhere Ansammlung der Wassermoleküle in der direkten Umgebung des geladenen Tochternuklids bewirkt. Durch diese Vergrößerung sinkt der Diffusionskoeffizient und die Ablagerung wird geringer [92]. Hierbei muss jedoch festgehalten werden, dass sie die genaue Größe der freien Zerfallsprodukte nicht quantifizieren. Wenn auch Zerfallsprodukte  $> 10 \text{ nm}$  zu den freien Zerfallsprodukten gezählt wurden, dann sind die Daten nicht mehr vergleichbar und unterschiedliche Tendenzen möglich.

Im Gegensatz dazu gehen Goldstein und Hopke jedoch davon aus, dass neutralisierte Zerfallsprodukte einen höheren Diffusionskoeffizienten haben und der höhere Wassergehalt zu einer schnelleren Neutralisation und dementsprechend zu einer schnelleren Deposition der Partikel beiträgt [43]. Dies würde die hier beobachteten Effekte der Reduktion der freien Zerfallsprodukte erklären. Insgesamt sind in der Literatur unterschiedliche Ergebnisse zu finden, die teilweise einen Anstieg und teilweise eine Reduktion der Radon-Zerfallsprodukte mit höheren relativen Luftfeuchtigkeiten zeigen. Es fällt dabei allerdings auf, dass keine Unterscheidung der Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte stattfindet. Im Rahmen dieser Arbeit wurden diese unterschieden und

geringere Werte der freien Zerfallsprodukte bei Anstieg der relativen Luftfeuchtigkeit gemessen und keine Veränderungen im Größenbereich der Cluster (siehe Kapitel 4.1.5). Der Vergleich mit Literaturdaten ist allerdings aufgrund der unbekanntenen Größenverteilung in der Literatur nur eingeschränkt möglich. Wurde der Anstieg der Zerfallsprodukte mit der relativen Luftfeuchtigkeit gemessen, könnte dies auf einem Anstieg im Bereich der angelagerten Zerfallsprodukte zurückzuführen sein.

Um zu überprüfen, ob der gleiche Effekt auch bei einer höheren Temperatur beobachtet werden kann, wurde eine Messreihe bei höherer Temperatur ( $T = 37,0 \pm 0,2^\circ\text{C}$ ) durchgeführt. Diese zeigte allerdings einen linearen Anstieg der Radonaktivitätskonzentration mit steigender relativer Luftfeuchtigkeit (siehe Abbildung 4.8). Die Messwerte bei niedrigeren Werten der relativen Luftfeuchtigkeit liegen zwar teilweise noch innerhalb des 95 % Konfidenzintervalls, der Anstieg der Radonaktivitätskonzentration ist dennoch erkennbar. In dem genutzten experimentellen Aufbau wird die Radonaktivitätskonzentration ausschließlich durch die Dauer der Quellaufsättigung bestimmt [72], weshalb davon auszugehen ist, dass die Messwerte für die Radonaktivitätskonzentrationen fehlerbehaftet sind, obwohl der Hersteller des Geräts angibt, dass Messungen bei den gewählten Bedingungen möglich sind [76].

Porstendörfer und Mercer [38] konnten die Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von positiv geladenem  $^{212}\text{Pb}$ , einem Zerfallsprodukt von  $^{220}\text{Rn}$ , von der relativen Luftfeuchtigkeit zeigen. Bei einer sehr geringen relativen Luftfeuchtigkeit ( $< 2\%$ ) ist dieser für das geladene  $^{212}\text{Pb}$  nicht mal halb so groß wie bei höheren Werten der Luftfeuchtigkeit. Allerdings führten sie ihre Experimente bei  $20^\circ\text{C}$  durch und es ist unklar, ob dieser Effekt bei höheren Temperaturen auch für andere Werte der relativen Luftfeuchtigkeit auftreten könnte. Tritt ein solcher Effekt innerhalb des Messgerätes für die Polonium-Nuklide auf, führt dies zu einer Veränderung der Abscheidung und damit der Effizienz, die dann bei der Berechnung der Radonaktivitätskonzentration berücksichtigt werden muss. Die Erhöhung der Temperatur führt ebenfalls zu einer Veränderung des Diffusionskoeffizienten (siehe Formel 2.27) und muss berücksichtigt werden. Da diese beiden Effekte die Abscheidecharakteristik beeinflussen, wäre eine Korrektur des jeweiligen Kalibrierfaktors des Messgeräts notwendig, um die tatsächlichen Werte messen zu können. Diese Korrektur kann nicht durchgeführt werden, da dafür die tatsächlichen Werte oder das Ausmaß der Veränderung der Abscheidung bekannt sein müssten. Der Einfluss der relativen Luftfeuchtigkeit auf die Messung von Radon und seinen Zerfallsprodukten ist daher auch für die Herstellung von Messgeräten von entscheidender Bedeutung.

Eine detaillierte Betrachtung der Daten bei höherer Temperatur ist aufgrund der fehlerhaften Messung der Radonaktivitätskonzentration allerdings nicht zielführend. Es wäre zwar möglich, die Radonaktivitätskonzentration in der Kammer mit Hilfe von Formel 3.3 und der Dauer der Quellaufsättigung zu berechnen, ein weiterer Messfehler im Bereich der Radon-Zerfallsprodukte kann allerdings weder ausgeschlossen noch quantifiziert werden. Hierfür wäre es notwendig, die EEC der Radon-Zerfallsprodukte mit einer anderen Methode oder einem anderen Messgerät zu bestimmen, um dadurch die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Werte zu verifizieren oder zu falsifizieren.

### 5.1.6. Temperatur

Der Anstieg der Temperatur bei gleicher Radonaktivitätskonzentration führte zu einem signifikanten Absinken der freien Zerfallsprodukte, wohingegen im Größenbereich der Cluster keine signifikanten Abweichungen erkennbar waren (siehe Kapitel 4.1.6).

Ein Grund dafür ist der steigende Diffusionskoeffizient mit steigender Temperatur (siehe Formel 2.27), wodurch die Deposition erhöht wird.

Zusätzlich kann ein möglicher Temperaturgradient innerhalb der Radonkammer die Verteilung beeinflussen. Die Radonkammer ist in einem Wasserbad positioniert, das dauerhaft beheizt werden kann. Die Oberseite der Kammer ist jedoch durch den Deckel aus Edelstahl in Kontakt mit der Laborluft ( $\approx 22^\circ\text{C}$ ). Je stärker die Radonkammer durch das Wasserbad geheizt wird, desto höher ist der Gradient zwischen dem Boden und den Außenseiten der Kammer im Vergleich zum Deckel. Dieser Gradient kann zur thermisch bedingten Konvektion und damit zu einem zusätzlichen Luftfluss in der Kammer führen.

Analog zu den hier gemessenen Ergebnissen, konnten Abdalla und Al-Hajry in Experimenten unter Laborbedingungen einen geringeren F-Faktor mit steigender Temperatur messen, wobei sie keine Unterscheidung der Größenfraktionen machen [97]. Sie verwenden allerdings in ihrem Aufbau  $^{226}\text{Ra}$ -haltige Erde als Radonquelle und führen die beobachteten Unterschiede auf die veränderte Emanation von Radon, bedingt durch die Temperatur, zurück. In den Experimenten, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, ist die Radonaktivitätskonzentration unabhängig von der Temperatur und dieser Einfluss kann für diese Experimente ausgeschlossen werden. Zusätzlich gehen Abdalla und Al-Hajry von einer temperaturbedingten Veränderung der Aerosolzusammensetzung aus, ohne dies genauer zu erklären [97].

Auch Singh et al. beobachteten bei der Messung von Radon und seinen Zerfallsprodukten das Absinken des F-Faktors mit steigender Temperatur. Sie führen diese Variation allerdings auf unterschiedliche Temperaturgradienten der Luft im Verlauf eines Tages und die damit einhergehende unterschiedliche ausgeprägte Konvektion zurück [55].

Die gemessenen Daten zeigen den gleichen Trend wie die Literaturdaten. Letztere wurden jedoch nicht unter vollständig kontrollierten Bedingungen durchgeführt und die Ergebnisse werden von anderen Faktoren wie veränderter Radonemanation beeinflusst. Die hier durchgeführten Experimente können andere Einflüsse ausschließen und die Reduktion der freien Zerfallsprodukte kann eindeutig auf eine Erhöhung der Temperatur zurückgeführt werden.

### 5.1.7. Aerosolgenerator

Um die Aerosolgrößenverteilung kontrollieren zu können, sollte ein Aerosolgenerator genutzt werden. Damit sollte die Gesamtmenge der Radon-Zerfallsprodukte, die in der Luft zurückbleiben, erhöht werden, um dadurch den Gleichgewichtsfaktor (F-Faktor) auf den von der ICRP angenommenen Wert von 0,2–0,4 zu steigern. Dies würde gleichzeitig die Zählrate des Messgerätes erhöhen und könnte eine detaillierte Quantifizierung von Effekten ermöglichen wie beispielsweise die Untersuchung der angelagerten Zerfallsprodukte, die ohne Aerosolgenerator nicht reproduzierbar waren. Zusätzlich sollte durch die gezielte Manipulation der Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte die Möglichkeit geschaffen werden, die größenabhängige Anlagerung in Bifurkationen zu untersuchen. Ein weiteres Ziel war die maximale Steigerung der freien Zerfallsprodukte, da diese wie bereits beschrieben (siehe Abbildung 2.7) für den größten Teil der Dosis verantwortlich sind. Diese Steigerung sollte dann für zukünftige Experimente die Untersuchung von DNA-Schäden im Respirationstrakt in einem Mausmodell abhängig vom Anteil der freien Zerfallsprodukte ermöglichen.

Obwohl der Aerosolgenerator laut Herstellerangaben Primärpartikel einer Größe von etwa 1,2 nm erzeugt, konnte keine reproduzierbare Steigerung der EEC der freien Zerfallsprodukte oder Cluster erreicht werden, lediglich die EEC der angelagerten Zerfallsprodukte konnten reproduzierbar gesteigert werden. Während bei sonstigen Experimenten die freien Zerfallsprodukte den größ-

ten Anteil an Zerfallsprodukten ausmachten, stellten bei einer Einstellung des Aerosolgenerators ( $5 \frac{l}{h}$ ,  $200 \frac{l}{h}$ ,  $35 \frac{l}{h}$ , 10 min) die angelagerten Zerfallsprodukte die größte Fraktion (siehe Kapitel 4.2).

Wie in Kapitel 2.3.1 beschrieben, ist die entstehende Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte von der Verteilung des vorhandenen Aerosols abhängig. Die Ergebnisse bestätigen, dass eine Anlagerung der Radon-Zerfallsprodukte an das vorhandene Aerosol stattfindet. Die erzeugten Partikel scheinen allerdings durch Agglomeration in ihrer Größe anzuwachsen, da ausschließlich die EEC der angelagerten Zerfallsprodukte erhöht werden konnten. Die Agglomeration kann zum einen bereits in den Schläuchen zwischen Aerosolgenerator und Radonkammer stattfinden, zum anderen kann es auch innerhalb der Kammer durch die lange Aufenthaltszeit ( $> 4$  h) zur Vergrößerung der Partikel durch Anlagerungen aneinander kommen. Die Aerosolgrößenverteilung selbst kann mit dem genutzten Messgerät nicht bestimmt werden. Da sich allerdings die Größenverteilung der Zerfallsprodukte ändert, ist die Annahme, dass es zur Agglomeration der erzeugten Primärpartikel kommt, gerechtfertigt. Auch Tu und Knutson konnten in ihren Experimenten zeigen, dass die Anlagerung der Zerfallsprodukte an vorhandenes Aerosol stattfindet und sich dieser Größenverteilung anpasst [98]. Biermann und Sawyer konnten einen ähnlichen Trend in Kombination mit Zigarettenrauch feststellen. Wenn sie zusätzliches Aerosol in ihrem Expositionssystem bereitstellten, konnten sie eine bimodale Verteilung beobachten, wobei ein Peak im Bereich des erzeugten Aerosols lag und der andere Peak im Bereich der freien Zerfallsprodukte [99].

Während die angelagerten Zerfallsprodukte deutlich erhöht werden konnten, wurden die freien Zerfallsprodukte und Cluster nicht reduziert. In einigen Experimenten kam es allerdings zu einem Anstieg der Cluster, wobei dieser nicht reproduzierbar war. Diese Beobachtung zeigt, dass durch die Erhöhung des Aerosols in der Radonkammer insgesamt mehr Radon-Zerfallsprodukte in der Luft verbleiben, ohne an den Oberflächen anzulagern. Da die Aerosolgrößenverteilung unbekannt ist, bleibt nicht auszuschließen, dass auch Partikel im Bereich der freien Zerfallsprodukte und Cluster durch den Aerosolgenerator erzeugt werden. Diese scheinen jedoch den kleineren Anteil am Aerosol in der Kammer zu haben. Aufgrund der unbekanntenen Aerosolgrößenverteilung in der Radonkammer können zwar keine Anlagerungskonstanten an das vorhandene Aerosol bestimmt werden, die für die Dosimetrie entscheidenden Größen, die EEC der verschiedenen Größenfraktionen, können jedoch bestimmt werden. Für die durchgeführten Experimente und auch zukünftige Experimente ist lediglich die Größenverteilung der radioaktiven Partikel von Interesse, die während der Experimente dauerhaft gemessen wird. Andere Aerosolpartikel in der Kammer tragen nicht zur Dosis bei und es ist nicht davon auszugehen, dass sie die Deposition der radioaktiven Partikel beeinflusst.

Die Nutzung des Aerosolgenerators bietet durch Steigerung der angelagerten Zerfallsprodukte die Möglichkeit zu untersuchen, ob deren Effekt auf die Lungendosis so gering ist wie aktuell angenommen (siehe Abbildung 2.7) oder ob es Abweichungen gibt. Außerdem konnte gezeigt werden, dass es durch Manipulation der Aerosolgrößenverteilung möglich ist, die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte zu verändern. Die Kombination aus dem bestehenden Versuchsaufbau mit anderen Aerosolquellen kann also unterschiedliche Größenverteilungen erzeugen, wodurch insbesondere die synergistischen Effekte von Radon im Kombination mit Zigarettenrauch [26] untersucht werden könnten.

## 5.2. Depositionsmessungen im Lungenmodell

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuer Messaufbau entwickelt, der dazu beitragen kann, die experimentelle Datenlage zur Deposition von Radon-Zerfallsprodukten in einem idealisierten Lungenmodell zu verbessern. Der Luftfluss durch das Modell sollte die menschliche Atmung mit den Phasen der Inspiration und Expiration abbilden. Insbesondere Daten zur Deposition von Nanopartikeln, zu denen auch die freien Zerfallsprodukte gehören, sind begrenzt. Hinzu kommt, dass die meisten Studien ausschließlich einen einseitig gerichteten Luftfluss beachten, der in den meisten Fällen die Phase der Inhalation abbilden soll [100]. Um experimentell die Deposition in den Modellen bestimmen zu können, wurde der Detektorkopf je an zwei unterschiedlichen Positionen angesetzt. Aus der Differenz der gemessenen  $R_{EEC}$  kann danach die Deposition der Zerfallsprodukte berechnet werden (siehe Kapitel 3.5). Die Positionierung des Detektorkopfes wurde hierbei so gewählt, dass sie die Ergebnisse möglichst minimal beeinflusst. Dennoch kann dieser Einfluss mit dem genutzten Messgerät nicht vollständig eliminiert werden. Der erste Einflussfaktor ist, dass Kanten am Modell entstehen, wenn der Detektorkopf daran angesetzt wird (siehe Abbildung 3.9). Die gerade Fläche des Gitters am Detektorkopf, die vollständig frei liegen muss (siehe Kapitel 3.2.2), trifft auf den kreisförmigen Querschnitt des Zylinders des Modells. Diese entstehenden Kanten verändern das Strömungsverhalten der Luft, die mit Hilfe des Beatmungsgerätes durch das Modell gepumpt wird. Zusätzlich limitiert die Notwendigkeit des freiliegenden Gitters des Messgerätes die Modellgröße. Der Messkopf kann nur an die Bereiche in dem Modell angesetzt werden, in denen der innere Radius des dargestellten Atemweges den Radius des Gitters ( $r_{\text{Gitter}} = 6,5 \text{ mm}$ ) übersteigt. Im Modell der ICRP ist bereits die 2. Generation mit einem Radius von  $r_{2.\text{Generation}} = 4,25 \text{ mm}$  [60] deutlich geringer. Der dritte Einflussfaktor ist der Luftstrom, der durch das Messgerät erzeugt wird mit einem Volumenstrom von etwa  $1,5 \frac{\text{l}}{\text{min}}$ . Dieser steht senkrecht zum Luftfluss, der von dem Beatmungsgerät durch das Modell gepumpt wird. Der Beatmungsluftfluss ist zwar deutlich größer als der des Messgerätes, dennoch wird er durch den Messgerät-Luftstrom beeinflusst. Bei niedrigerer Atemfrequenz von 12 Atemzügen pro Minute (BPM) erzeugt das Beatmungsgerät einen Volumenstrom von  $12 \frac{\text{l}}{\text{min}}$ , bei höherer Atemfrequenz ( $RR = 30 \text{ BPM}$ ) steigt dieser auf  $30 \frac{\text{l}}{\text{min}}$ .

Der entwickelte experimentelle Aufbau bietet jedoch durch das genutzte Beatmungsgerät den großen Vorteil, dass der oszillatorische Atemzyklus nachgestellt werden kann. Es kann somit nicht nur isoliert der Einfluss der Inspiration und Expiration gemessen werden, sondern auch potentielle Effekte, die durch die Kombination aus beiden Luftstromrichtungen hervorgerufen werden. Die meisten Modelle nutzen einen kontinuierlichen Luftfluss, der weder die unterschiedliche Geschwindigkeit des Luftstroms mit einem Stillstand bei der Umkehr des Luftstroms abbildet, noch die unterschiedlichen Flussrichtungen beachtet [100].

### 5.2.1. Deposition in Bifurkationen im Vergleich zu einem Hohlzylinder

Die ersten Messungen dienen der Validierung des neuen Aufbaus. Hierfür wurde die Deposition in einem Modell der Trachea mit der in Bifurkation verglichen. Es konnte die aus Simulationen bekannte erhöhte Deposition in Bifurkationen gemessen werden (siehe Kapitel 4.3.1). Dies zeigt, dass das neu entwickelte System für die Untersuchung weiterer Parameter wie die Variation des Bifurkationswinkels oder der Atemfrequenz geeignet ist.

Unerwarteterweise wurden mehr freie Zerfallsprodukte im hinteren Bereich des Hohlzylinders detektiert als vorne, obwohl dieser Bereich weiter von der zur Radonkammer zeigenden Öffnung entfernt ist (siehe Kapitel 4.3). Dies würde bedeuten, dass die Zerfallsprodukte in diesem Bereich zunehmen, je mehr Strecke sie in dem Trachea-Modell zurücklegen. Hierbei zeigt die statische

Auswertung zwar einen signifikanten Unterschied des  $R\_EEC$  ( $p < 0,001$ ) zwischen den Werten in der Mitte und am Ende des Modells, der Fehler der Messung übersteigt jedoch den gemessenen Anstieg ( $5,9 \pm 12,3\%$ ). Eine mögliche Ursache hierfür kann der Anschluss des Beatmungsgeräts an das Modell sein. Der Schlauch wird mit Hilfe eines kegelförmigen Anschlussstücks mit dem Modell verbunden, ohne dass diese Verbindung zusätzlich abgedichtet wird. Es kann daher nicht ausgeschlossen werden, dass bei Ausdehnung des Beatmungsbeutels und dem dadurch entstehenden Unterdruck in dem Modell ein geringer Anteil an Luft direkt aus der Kammer eingesaugt wird, ohne vorher das Trachea-Modell durchlaufen zu haben. Um diesen Einfluss bei Messungen am Bifurkationsmodell zu minimieren, wurde der Abstand zwischen Schlauchanschluss und der Position des Detektorkopfes vergrößert.

Dennoch zeigt der Vergleich eine deutlich höhere Deposition der freien Zerfallsprodukte in dem Modell der Bifurkation (siehe Kapitel 4.3). Dieser Trend ist aus Simulationen bekannt [12, 13, 68, 69, 101]. Da der hauptsächliche Depositionsmechanismus für die freien Zerfallsprodukte die stochastische Brown'sche Molekularbewegung ist, wäre ein homogenes Depositionsmuster zu erwarten. Sekundärströmungen, die quer zur hauptsächlichen Luftflussrichtung sind, können die Ablagerung von Partikeln in diesem Größenbereich jedoch zusätzlich beeinflussen und tragen dadurch zu einer inhomogenen Verteilung bei [102]. Diese sind im Bereich der Trachea geringer als im Bereich von Bifurkationen, wodurch die Hotspot-Regionen entstehen. Da die Sekundärströmungen von einer Kombination aus der Geometrie des durchströmten Körpers und den Eigenschaften des Luftflusses selbst abhängen, wurde der Einfluss des Bifurkationswinkels und der Einfluss der Atemfrequenz anschließend untersucht.

In vielen Studien, die einen einseitigen Luftfluss nutzen, wird die Reynolds-Zahl ( $Re$ ) angegeben, um den Grad an Turbulenzen in der Strömung zu beschreiben. Da im Rahmen dieser Arbeit der gesamte Atemzyklus inklusive Inspiration, Expiration und der damit verbundenen Umkehr der Luftströmung abgebildet wird, verändert sich die Reynolds-Zahl ebenfalls stark. Sie hängt von der Strömungsgeschwindigkeit der Luft ( $v_{Luft}$ ), dem Durchmesser des jeweiligen Atemwegs ( $d_{Atemweg}$ ) und der kinematischen Viskosität der Luft ( $\nu_{Luft}$ ) ab und kann wie folgt berechnet werden [103]:

$$Re = \frac{v_{Luft} \cdot d_{Atemweg}}{\nu_{Luft}} \quad (5.1)$$

Unter Beachtung des Verhältnisses zwischen der Dauer der Inspiration und Expiration (1:3), liegt das Maximum der Reynolds-Zahl bei einer Atemfrequenz von 12 BPM bei  $Re_{Inspiration} \approx 1800$  und  $Re_{Expiration} \approx 600$ . Für die höhere Atemfrequenz mit 30 BPM liegen die Werte der Reynolds-Zahl bei  $Re_{Inspiration} \approx 4500$  und  $Re_{Expiration} \approx 1500$ . Zum Zeitpunkt des Richtungswechsels der Luftströmung beim Wechsel von Inspiration und Expiration und andersherum, ist die Reynolds-Zahl kurzzeitig  $Re_{Wechsel} = 0$ . Zusätzlich werden durch die Umkehr der Luftströmung zusätzliche Effekte hervorgerufen, die durch eine reine Betrachtung der Reynolds-Zahl nicht berücksichtigt werden würden. Es kommt beispielsweise in den Phasen des reduzierten Luftflusses kurz vor dem Phasenwechsel dazu, dass in einigen Bereichen die Luftströmung entgegen der eigentlichen Richtung strömt [104]. Der Luftstrom kann aufgrund seiner Trägheit nicht sofort vollständig seine Richtung ändern. Die Betrachtung einer Querschnittsfläche orthogonal zur Achse des jeweiligen Zylinders zeigte einerseits Bereiche, wo die Luft in Richtung Inspiration strömt und andererseits bereits Bereiche, wo die Luft in Richtung der Expiration fließt. Dieser Trend, dass Strömungen in beide Richtungen auftreten, wurde sowohl beim Wechsel zwischen Inspiration zur Expiration als auch andersherum beobachtet [105].

Der neu entwickelte Aufbau kann dies abbilden und bietet dementsprechend einen großen Vorteil gegenüber Studien, die mit einem einseitigen Luftstrom arbeiten.

### 5.2.2. Bifurkationswinkel

Nach Inbetriebnahme und Validierung des Aufbaus wurde der Einfluss des Bifurkationswinkels ( $\varphi$ ) auf die Deposition untersucht. Hierfür wurde ein symmetrisches Modell mit einem nativen Bifurkationswinkel ( $\varphi = 70^\circ$ ) und ein Modell mit einem sehr großen Winkel ( $\varphi = 180^\circ$ ) verglichen. Hiermit sollte überprüft werden, ob interindividuelle Unterschiede [106] einen messbaren Einfluss auf die Deposition der freien Zerfallsprodukte haben. Die Ergebnisse (siehe Kapitel 4.3.2) zeigen eine tendenziell höhere Deposition bei einem größeren Bifurkationswinkel mit einem Anstieg von 5% (siehe Kapitel 4.3.2). Hierbei muss jedoch beachtet werden, dass die Fehler der Depositionsberechnung mit  $\pm 8,8\%$  und  $\pm 11,8\%$  größer sind als dieser Unterschied.

Die beschriebenen Inhomogenitäten im Luftstrom führen nicht nur zu der Entstehung von Hotspots im Bereich der Bifurkationen, sondern können ebenfalls die Deposition bei unterschiedlichen Bifurkationswinkeln beeinflussen. Hofmann et al. untersuchten den Einfluss des Winkels auf die Luftströmung sowie auf die Deposition in Bifurkationen während der Inspiration und Expiration. Zusätzlich analysierten sie die Depositionsdichte von Partikeln, also die Anzahl an Partikeln die auf einer bestimmten Fläche anlagern [107]. In ihrem idealisierten Modell der 3. Lungengeneration konnten sie hierbei in der Phase der Inspiration eine erhöhte Gesamtdeposition simulieren, wobei sich die maximale Depositionsdichte nicht unterschied. Für die Dosimetrie bedeutet dies, dass durch entstehende Inhomogenitäten des Luftflusses mehr Zellen bestrahlt werden, ihre Dosis jedoch unabhängig vom Bifurkationswinkel ist. Anders stellte sich dies in der Phase der Expiration dar, hier wurde ebenfalls eine höhere Gesamtdeposition in ihrem theoretischen Modell simuliert, allerdings stieg mit dem Bifurkationswinkel auch die maximale Depositionsdichte an. Dies führt dazu, dass etwa gleich viele Zellen bestrahlt werden, diese jedoch eine höhere Dosis bei größerem Winkel erhalten [107]. Pradhan und Guha untersuchten die Luftströmungen in verschiedenen idealisierten Bifurkationen und konnten hierbei bereits bei einem Bifurkationswinkel von  $5^\circ$  feststellen, dass es zur Ausbildung sekundärer Strömungen kommt. Diese sind bei einem Bifurkationswinkel von  $35^\circ$  deutlich ausgeprägter [108]. Es ist unklar, ob und inwieweit ein noch größerer Bifurkationswinkel als der hier getestete ( $\varphi = 180^\circ$ ) diesen Effekt noch weiter verändert. Wird dieser Effekt durch die weitere Vergrößerung des Winkels weiter verstärkt, dann könnte dies eine Erklärung für die gemessene Tendenz der höheren Deposition sein.

Neben dem Bifurkationswinkel selbst spielen für die Verteilung der Luftströmungen in humanen Respirationstrakt noch viele weitere geometrische Faktoren eine Rolle. Insbesondere durch den Nasen-Rachen-Raum entstehen Turbulenzen und Sekundärströmungen [109, 110], die sich bis in die Trachea und tieferliegende Lungenregionen fortsetzen [111]. In einem System bestehend aus einer Aneinanderreihung von Bifurkationen trägt nicht nur der Bifurkationswinkel zur Erzeugung von Sekundärströmungen bei, sondern ebenfalls die Planarität des Systems. Liegen zwei aufeinander folgende Bifurkationen planar zueinander, also in einer Ebene, dann entsteht ein anderes Strömungsmuster als wenn eine Bifurkation aus der Ebene hinaus ragt [111]. Der im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Aufbau kann durch Ergänzung weiterer Bifurkationen auch diese Einflüsse messen. Der Einfluss eines turbulenten Luftstroms am Beginn der Bifurkation kann hierbei beispielsweise durch das Hinzufügen eines Nasopharynx-Modells vor der Trachea umgesetzt werden. Auch das Ergänzen weiterer Bifurkationen ist leicht möglich. In Kombination mit dem oszillatorischen Luftfluss bietet das System eine Vielzahl an Möglichkeiten, um die unterschiedlichen geometrischen Einflüsse des Respirationstraktes auf die Deposition freier Zerfallsprodukte zu untersuchen und zu charakterisieren.

### 5.2.3. Atemfrequenz

Neben den geometrischen Eigenschaften des Respirationstraktes, sollte zusätzlich der Einfluss der physiologischen Parameter der Atmung gemessen werden. Dafür wurde die Deposition bei einer Atemfrequenz von 12 Atemzügen pro Minute (BPM) mit der von 30 BPM verglichen. Die Auswirkung der Atemfrequenz ist von besonderem Interesse, da diese bei physischer Aktivität stark variieren kann (siehe Tabelle 2.5). Die durchgeführten Experimente zeigten keine Unterschiede in der Deposition bei den beiden getesteten Atemfrequenzen (siehe Kapitel 4.3.3).

Bei der Variation der Atemfrequenz treten zwei gegensätzliche Effekte auf, die die Deposition beeinflussen. Einerseits werden durch den höheren Luftfluss absolut betrachtet mehr freie Zerfallsprodukte durch das genutzte Modell gepumpt. Bei gleichbleibender prozentualen Deposition würde dies die Ablagerung deutlich steigern. Durch die höhere Geschwindigkeit der Luft entstehen zusätzlich vermehrt sekundäre Strömungen, die die Deposition erhöhen können [12]. Andererseits sinkt mit der Erhöhung der Atemfrequenz die Aufenthaltsdauer der einzelnen Partikel in dem hier genutzten Modell. Da sich die freien Zerfallsprodukte durch die Brown'sche Molekularbewegung ablagern, sinkt ihre Depositionswahrscheinlichkeit mit der verringerten Aufenthaltsdauer [67].

Die Simulationen von Hofmann et al. zeigten im Gegensatz zu den hier gemessenen Ergebnissen allerdings dennoch einen Anstieg der Deposition bei einer Erhöhung der Atemfrequenz [67]. Diese Ergebnisse bezogen sich jedoch auf alle Größenfraktionen der Zerfallsprodukte, während in den gezeigten Messungen lediglich die freien Zerfallsprodukte ausgewertet wurden. Ein solcher Anstieg der Gesamtdeposition ist aufgrund unterschiedlicher Depositionsmechanismen für die verschiedenen Größenfraktionen nicht überraschend. Insbesondere große Zerfallsprodukte, die durch Sedimentation und Impaktion anlagern, werden stärker durch die Geschwindigkeit des Luftstroms beeinflusst. Im Gegensatz zu den Ergebnissen von Hofmann et al. fanden George et al. in Probanden keine Abhängigkeit der Deposition der Radon-Zerfallsprodukte von der Atemfrequenz. Die Probanden atmeten dabei radonhaltige Luft aus Minen ein. Ihre Auswertung zeigte hingegen, dass die Deposition mit der Zunahme des Atemzugvolumens anstieg. Allerdings wurde die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte in ihren Experimenten nicht detaillierter dokumentiert, wodurch unklar ist, ob die unterschiedlichen Größenfraktionen in verschiedenem Maße in der Lunge der Probanden zurückbleiben [112].

In experimentellen Untersuchungen in einem anatomischen Lungenmodell fanden Li et al. eine deutliche Reduktion der Deposition mit dem Anstieg der Atemfrequenz von 5 BPM auf 30 BPM. Sie nutzten hierbei gasförmiges Iod, das einen ähnlichen Diffusionskoeffizienten hat wie  $^{218}\text{Po}$ . Sie variierten in ihren Experimenten zwar zyklisch den Luftfluss, allerdings ohne den Luftstrom umzukehren und die Phase der Expiration abzubilden. Zusätzlich bestimmten sie lediglich die Gesamtdeposition, ohne dabei zwischen speziellen Abschnitten zu differenzieren [113]. Einen ähnlichen Trend fanden auch Shi et al., die den Luftfluss in einem idealisierten Modell der 3.-5. Lungengeneration simulierten. Sie analysierten jedoch zusätzlich die Orte der Deposition in dem Modell und reproduzierten die bekannten Hotspot-Regionen in den Bifurkationen. Für Partikel mit einem Durchmesser von  $d = 1 \text{ nm}$  konnten sie zusätzlich feststellen, dass bei einem Anstieg der Reynolds-Zahl verbunden mit einem Anstieg der Atemfrequenz die Deposition verringert wurde [114]. Balásházy und Hofmann simulierten die Deposition von Partikeln verschiedener Durchmesser ( $d = 1 \text{ nm}$ ,  $d = 10 \text{ nm}$ ) in Bifurkationsmodellen. Sie konnten hier gegensätzliche Trends für die beiden Größen identifizieren. Während kleinste Partikel ( $d = 1 \text{ nm}$ ) bei höheren Durchflussraten eine geringe Deposition aufwiesen, war dieser Effekt für die größeren Partikel ( $d = 10 \text{ nm}$ ) andersherum und die Deposition stieg an [115]. Im Rahmen dieser Arbeit werden Radon-Zerfallsprodukte mit  $d = 1 \text{ nm}$  und  $d = 10 \text{ nm}$  beide zur Größenfraktion der freien

Zerfallsprodukte gezählt und keine weitere Unterscheidung gemacht. Da diese Partikel laut der Simulationen von Balásházy und Hofmann allerdings gegensätzliches Verhalten zeigen, kann dies dazu beitragen, dass keine Unterschiede mit dem genutzten Gerät messbar sind.

Der Vergleich mit Literaturdaten zeigt die große Variabilität an gemessenen Einflüssen. Das neu entwickelte Modellsystem bietet drei große Vorteile, die auch für zukünftige Messungen relevant sein können.

Erstens wird mit dem genutzten Modell nicht nur eine Atemphase abgebildet, sondern der gesamte Atemzyklus inklusive unterschiedlicher Geschwindigkeiten sowie der Umkehr der Luftflussrichtung kann simuliert werden. Zusätzlich ist mit dem genutzten Beatmungsgerät eine Variation der Atemparameter möglich.

Zweitens kann das Modell leicht modifiziert werden, indem Ergänzungen oder Veränderungen der Struktur entworfen und anschließend 3D gedruckt werden. Hierbei können nicht nur Veränderungen einer einzelnen Bifurkation wie die Variation des Bifurkationswinkels oder die Erstellung einer asymmetrischen Bifurkation vorgenommen werden. Es können ebenfalls der Nasen-Rachen-Raum oder weitere Bifurkationen an dem hier genutzten Modell ergänzt werden. Wird das Modell stückweise ergänzt oder modifiziert, ermöglicht dies die eindeutige Zuordnung von beobachteten Veränderungen der Deposition zur jeweiligen Modellanpassung.

Drittens werden die Radon-Zerfallsprodukte gemessen und keine anderen Stoffe genutzt. In andere Studien wurden Stoffe verwendet die einen ähnlichen Diffusionskoeffizienten haben wie die Radon-Zerfallsprodukte, um diese nachzuahmen [113]. Es müssen hier dementsprechend keine Annahmen bezüglich des Verhaltens der Radon-Zerfallsprodukte getroffen werden, die fehlerbehaftet sein können.

Dennoch gibt es auch die bereits beschriebenen limitierenden Faktoren des Modells. Hierzu zählen die erzeugten Turbulenzen durch den Luftstrom des Messgerätes, die Kanten in dem Modell, um den Messkopf ansetzen zu können und die Notwendigkeit, dass der Atemwegsdurchmesser größer ist als der Durchmesser des Gitters am Detektorkopf.

Insgesamt konnten mit dem neu entwickelten Modell bereits erste Messungen durchgeführt werden, die keinen Einfluss der Atemfrequenz auf die Deposition der freien Zerfallsprodukte zeigte. Die Steigerung des Bifurkationswinkels zeigte die Tendenz der steigenden Deposition mit Vergrößerung des Winkels, wobei die hohen Fehlerwerte zu beachten sind.

### 5.3. Filterung von Radon-Zerfallsprodukten durch Masken

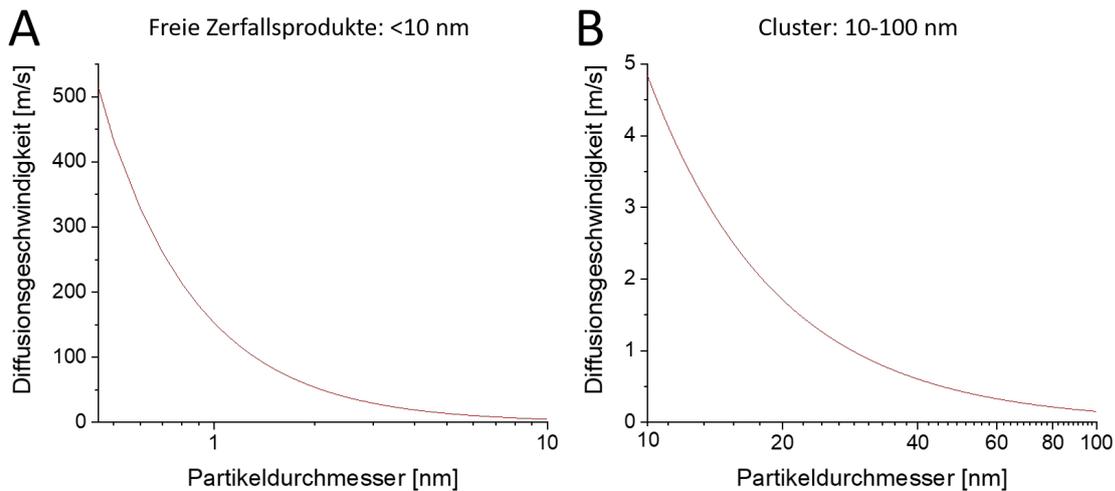
Die Experimente zur Bestimmung der Filtereffizienz von Gesichtsmasken zeigten eine fast vollständige Filterung der freien Zerfallsprodukte und eine sehr gute Filterung der Cluster für beide Maskentypen (siehe Kapitel 4.4). Die Porengrößen der Masken sind größer als die Durchmesser der freien Zerfallsprodukte und Cluster, welche dementsprechend nicht dadurch zurückgehalten werden, dass sie zu groß sind. Partikel in diesem Größenbereich ( $d < 200$  nm) können jedoch durch die Brown'sche Molekularbewegung an Oberflächen, in diesem Fall an der Maske, anlagern (siehe Kapitel 2.3.2). Ihre Diffusionsgeschwindigkeit ( $\nu_{Diff}$ ) kann dabei mit Hilfe der kinetischen Gastheorie berechnet werden [116]:

$$\nu_{Diff} = \sqrt{\frac{3k_B T}{m}} \quad (5.2)$$

Hierbei entspricht  $k_B$  der Boltzmann-Konstanten ( $k_B = 1,380650 \cdot 10^{-23} \frac{J}{K}$  [18]),  $T$  der Temperatur und  $m$  der Masse des Partikels. Mit der Annahme, dass es sich um sphärische Partikel ( $V = \frac{4}{3}\pi \cdot r^2$ ) mit einer Dichte von  $\rho = 1 \frac{g}{cm^3}$  handelt, kann die jeweilige Diffusionsgeschwindigkeit bestimmt werden:

$$\Rightarrow \nu_{Diff} = \sqrt{\frac{3k_B T}{\rho \cdot V}} = \sqrt{\frac{3k_B T}{\rho \cdot \frac{4}{3}\pi \cdot (\frac{1}{2}d)^2}} \quad (5.3)$$

Sie steigt mit sinkender Partikelgröße deutlich an (siehe Abbildung 5.2).



**Abbildung 5.2.** Diffusionsgeschwindigkeit in Abhängigkeit der Partikelgröße für die freien Zerfallsprodukte (A) und die Cluster (B)

Die Geschwindigkeit der Partikel durch die Maske ist durch den Luftstrom des Messgeräts bestimmt. Mit einem Volumenstrom von  $1,49 \frac{l}{min}$  und einer Öffnungsfläche des Detektorkopfes von  $1,33 \text{ cm}^2$  entspricht sie  $\nu_{Luftstrom} = 0,19 \frac{m}{s}$ .

Die Diffusionsgeschwindigkeit übersteigt diese im gesamten Größenbereich der freien Zerfallsprodukte um mindestens eine Größenordnung und liegt für Partikel mit einem Durchmesser zwischen  $0,5\text{--}10 \text{ nm}$  im Bereich von  $4,83\text{--}432,18 \frac{m}{s}$ , wobei die kleinsten Partikel die höchste Diffusionsgeschwindigkeit haben (siehe Abbildung 5.2A).

Im Bereich der Cluster übersteigt die Diffusionsgeschwindigkeit die des Luftstroms nicht mehr so deutlich, wobei sie für die größten Zerfallsprodukte, die noch den Clustern zuzuordnen sind ( $d = 100 \text{ nm}$ ), sogar geringer ist ( $\nu_{Diff} = 0,15 \frac{m}{s}$ ). Es ist jedoch festzuhalten, dass auch im Bereich der Cluster für die meisten Partikelgrößen die Diffusionsgeschwindigkeit deutlich größer ist (siehe Abbildung 5.2B).

Insgesamt zeigt sich, dass je kleiner die Partikel sind, desto wahrscheinlicher ist die Anheftung durch Diffusion an die Maske. Lediglich für größere Zerfallsprodukte im Bereich der Cluster ist anzunehmen, dass ein gewisser Anteil die Maske durchströmen kann. Mit dem genutzten Messgerät ist es nicht möglich, die genaue Partikelgrößenverteilung zu bestimmen, da lediglich zwischen freien Zerfallsprodukten ( $< 10 \text{ nm}$ ), Clustern ( $20\text{--}100 \text{ nm}$ ) und angelagerten Zerfallsprodukten ( $> 100 \text{ nm}$ ) unterschieden wird (siehe Kapitel 3.2.2). Die Rechnungen geben allerdings einen Hinweis darauf, für welche Partikelgrößen die Filterung am wahrscheinlichsten ist.

Die experimentell bestimmte fast vollständige Filterung der Radon-Zerfallsprodukte ist für das tatsächliche Tragen von Masken jedoch nicht zu erwarten. Ein Grund dafür ist, dass Menschen, die eine Maske tragen, keine perfekte Abdichtung zwischen der Maske und ihrem Gesicht erreichen. Dementsprechend kann Luft an der Maske vorbei strömen ohne gefiltert zu werden [117]. Außerdem kann die Feuchtigkeit der Maske einen Einfluss auf die Filtereffizienz haben. Die Experimente wurden bei einer relativen Luftfeuchtigkeit von etwa 65 % durchgeführt und können somit Umweltbedingungen abbilden. Die Ausatemluft des Menschen hat allerdings eine deutliche höhere relative Luftfeuchtigkeit, wodurch die Feuchtigkeit der Maske und auch die Filtereffizienz beeinflusst werden könnte. Dies müsste separat untersucht werden, wobei das Ziel der durchgeführten Messungen die Beantwortung der grundlegenden Frage war, ob und in welchem Maße Gesichtsmasken die Filterung von Radon-Zerfallsprodukten ermöglichen.

Die Ergebnisse zeigen eine hohe Filtereffizienz, wodurch Masken eine schnelle und kostengünstige Methode zur Reduzierung der Strahlenbelastung durch Radon-Zerfallsprodukte bieten, da sie insbesondere die freien Zerfallsprodukte effektiv zurückhalten können [79].

### 5.4. Löslichkeit

Die Löslichkeit von Radon nach einer Stunde Exposition wurde in humanen Blutkomponenten, Proteinlösungen (Hämoglobin, Albumin) sowie in Ölsäure, 1-Pentanol und deren Mischung experimentell bestimmt. Die Experimente wurden hierbei mit einer etablierten Methode durchgeführt, die die Diffusion von Radon aus der Probe minimiert [7]. Wichtig ist hierbei, dass bei dem Verschluss der Proben innerhalb der Kammer keine radonhaltige Luft in den Gefäßen eingeschlossen wird. Diese würde zu einer Steigerung der gemessenen Probenaktivität führen und somit die Berechnung der Löslichkeit beeinflussen. Um diesen Einfluss zu minimieren, wurde wie bereits beschrieben (siehe Kapitel 3.7.2) ein Füllstandsprüfer verwendet. Zusätzlich konnte bei einigen Proben beim händischen Sichern der Proben und dem damit verbundenen Andrücken des Deckels an das Gefäß ein minimales Auslaufen der Proben von einigen Tropfen festgestellt werden. Dies ist nur dann möglich, wenn die Probe das gesamte Gefäß ausfüllt. Da hierbei keine systematischen Unterschiede zwischen diesen Proben mit Proben ohne minimales „Überlaufen“ gemessen wurden, ist davon auszugehen, dass der Einfluss geringer ist als die statistische Schwankung der Messwerte.

Die Löslichkeit in humanen Blutproben zeigte keine signifikanten Unterschiede in Vollblut und Erythrozytenkonzentrat aber erhöhte Werte im Plasma. Insgesamt streuten die Messwerte relativ stark mit Standardabweichungen von bis zu 36,9 % im Erythrozytenkonzentrat (siehe Kapitel 4.5). Ein möglicher Einflussfaktor für diese hohen Schwankungen sind interindividuelle Unterschiede der Blutzusammensetzung. Es existieren lediglich Normbereiche unterschiedlicher Bestandteile [64], die genaue Zusammensetzung der humanen Blutproben wurde allerdings nicht bestimmt. Blutproben von dem selben Spender zu erhalten, war nicht möglich und würde auch keinen Vorteil bieten, da es auch hier zu intraindividuellen Schwankungen der Blutzusammensetzung kommen kann. Die exakte Zusammensetzung des Blutes wie beispielsweise der Hämoglobingehalt der Erythrozyten variiert auch für gesunde Individuen im Verlauf des Tages und auch zwischen unterschiedlichen Tagen und Monaten [118]. Der Einfluss der unterschiedlichen Zusammensetzungen kann daher experimentell nicht eliminiert werden. Die Daten zeigten jedoch, dass die Schwankungen aus einer einzelnen Blutprobe bereits sehr hoch waren und daher scheinen die interindividuellen Unterschiede der Zusammensetzung nicht ausschlaggebend zu sein.

Auch die in den Proben enthaltenen Zusätze beeinflussen die Ergebnisse (siehe Kapitel 3.7.1), da diese nicht nur zwischen den Komponenten schwanken, sondern auch bei den verschiedenen Proben einer Komponente variieren können. Eine Exposition ohne Zusätze ist allerdings nicht möglich, da die Proben 1 h offen in der Radonkammer exponiert werden und in dieser Zeit koagulieren würden. Dies würde die Probeneigenschaften verändern und somit auch die Löslichkeit beeinflussen.

Zusätzlich sollte beachtet werden, dass das genutzte Erythrozytenkonzentrat aufgrund der Lagerungsdauer nicht mehr zur Transfusion zugelassen war, wodurch die Zahl der lebenden Erythrozyten im Vergleich zum Vollblut variieren kann. Da allerdings davon auszugehen ist, dass Radon ausschließlich durch den passiven Prozess der Diffusion in die Probe gelangt, sollte dieser Unterschied die Ergebnisse nicht signifikant beeinflussen.

Die experimentell bestimmten Löslichkeitswerte sollten auch zur Verifikation des Modells der ICRP beitragen, die zur Berechnung unbekannter Werte in Gewebe auf den gewichteten Mittelwert basierend auf der Gewebezusammensetzung zurückgreift (siehe Formel 2.19). Da sich das humane Vollblut fast vollständig aus Erythrozytenkonzentrat (45 %) und Plasma (54 %) zusammensetzt (siehe Kapitel 2.5.1), sollte der gewichtete Mittelwert der beiden Komponenten der Löslichkeit von Radon in Vollblut entsprechen. Die Löslichkeit von Radon ist allerdings in Plasma signifikant höher als in den anderen beiden Komponenten. Sie ist im Erythrozytenkonzentrat im Vergleich zu Vollblut etwas erhöht. Der berechnete Mittelwert übersteigt daher den experimentell bestimmten Wert, wobei die hohen Schwankungen der Messwerte eine definitive Aussage erschweren.

Obwohl sich Radon kaum in Wasser sondern eher in Fett löst [82] und dies der Hauptbestandteil von Plasma ist, wurde in Plasma die höchste Löslichkeit der Blutkomponenten gemessen. Plasma enthält im Vergleich zu Wasser allerdings noch Proteine und niedermolekulare Substanzen (siehe Kapitel 2.5.1). Im nächsten Schritt wurde daher die Löslichkeit in wässrigen Lösungen von Albumin bestimmt. Diese sollten zusätzlich mit Hämoglobin-Lösungen verschiedener Konzentrationen verglichen werden. Die Bestimmung der Löslichkeit zeigte weder eine Konzentrationsabhängigkeit noch signifikante Unterschiede zwischen den Proteinen bei gleicher Konzentration (siehe Kapitel 4.5). Die bekannte höhere Löslichkeit von Radon in Fettsäuren im Vergleich zu Wasser beruht laut Simulationen darauf, dass ein Radonatom die geordnete Struktur der Wassermoleküle stärker stört als die der größeren Fettsäuren [82]. Die gelösten Proteine können ebenfalls die geordnete Wasserstruktur stören und dadurch zu einer Erhöhung der Löslichkeit von Radon im Vergleich zu reinem Wasser beitragen.

Vergleicht man die gemessene Löslichkeit von Radon mit Daten von Xenon, werden Unterschiede deutlich. Obwohl die beiden Edelgase einen ähnlichen Van-der-Waals-Radius haben ( $r_{Xe} = 216$  pm,  $r_{Rn} = 220$  pm [119]) und in Proteinen in ähnlichen Stellen anlagern können [120], zeigt Xenon einen anderen Trend.

Die Bestimmung der Löslichkeit von Xenon in verschiedenen Proben zeigte folgende Abstufungen [121]:

$$S_{Wasser} < S_{Plasma} < S_{Vollblut} < S_{Hämoglobin} < S_{Erythrozyten} \ll S_{Fett}$$

Dieser Trend wäre auch zu erwarten, wenn die Löslichkeit für Radon dem Modell der ICRP folgen würde und man diese additiv berechnen könnte. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit gemessenen Daten für Radon folgen nicht dieser Reihenfolge.

Während die hier gemessene Löslichkeit von Radon in humanen Blutproben und Protein-Lösungen ebenfalls zwischen der Löslichkeit von Wasser und Fettsäuren lag, konnte der Trend für Plas-

ma, Vollblut und Erythrozyten nicht gemessen werden. Ein möglicher Grund hierfür könnte die Dauer der Exposition sein, denn Conn geht davon aus, dass seine Proben mit Xenon gesättigt sind [121]. In den hier durchgeführten Experimenten wird die Löslichkeit von Radon nach einer Stunde Exposition gemessen, wobei nicht sichergestellt werden kann, dass die Sättigung bereits erreicht ist. Eine längere Exposition der Proben mit Radon könnte zu einer veränderten Löslichkeit und damit zu einem ähnlichen Trend führen. Das Erreichen der Sättigung kann mit dem genutzten experimentellen Aufbau jedoch nicht garantiert werden. Die Erhöhung des Oberflächen-Volumen-Verhältnisses ( $\frac{A}{V} = 1 \frac{1}{cm}$ ) der Probe würde das Erreichen der Sättigung beschleunigen, dies wurde allerdings bereits optimiert. Eine Vergrößerung des Probenradius ist nicht möglich, da die anschließende gammaspektroskopische Messung nicht mehr innerhalb der Abschirmung des Detektors stattfinden könnte. Dies würde zu einer Erhöhung der Hintergrundstrahlung führen. Eine Verringerung der Probenhöhe ist ebenfalls nicht zweckmäßig, da diese die Zählrate der Gammaspektren verringern und damit ebenfalls die Qualität der Daten beeinflussen würde. Eine Erhöhung der Expositionszeit ist ebenfalls nicht zielführend, da hier nicht sichergestellt werden kann, dass die unterschiedlichen Proben stabil sind. Insbesondere in Blutproben und auch in potentiellen Gewebeproben können sich durch die offene Exposition bei Raumtemperatur die zellulären Eigenschaften verändern [7]. Ein Vorteil der kürzeren Expositionszeiten ist der mögliche Vergleich mit anderen Daten, die mit dem gleichen Aufbau in früheren Arbeiten bestimmt wurden. Zusätzlich ist die Dauer der Radontherapie in Heilstollen ebenfalls auf eine Stunde pro Sitzung beschränkt.

Im Gegensatz zu den hier durchgeführten Experimenten in humanen Blutproben, geht die ICRP davon aus, dass die Sättigung des Blutes mit Radon sofort erreicht wird [10]. Diese Annahme scheint wegen des großen Oberflächen-Volumen-Verhältnisses ( $4000\text{--}14000 \frac{1}{cm}$ ) in den Alveolen gerechtfertigt. Die Gasaustauschfläche in den Alveolen beträgt im Menschen etwa  $80\text{--}140 \text{ m}^2$  und die Blutmenge im Kapillarbett variiert je nach körperlicher Anstrengung zwischen  $100\text{--}200 \text{ ml}$  [122].

Neben dem beobachteten Löslichkeitstrend von Xenon wurden mehrere Kavitäten in Hämoglobin entdeckt, an die Xenon anlagern kann [123]. Wäre dies auch für Radon der Fall, dann müsste ein Anstieg der Löslichkeit mit der Hämoglobin-Konzentration messbar sein. Da dies nicht beobachtet werden konnte, ist davon auszugehen, dass die Löslichkeit von Radon in den Hämoglobin-Lösungen hauptsächlich durch gelöstes Radon zwischen den Wasser- und Proteinmolekülen bestimmt wird und nicht durch eine gesteigerte Anlagerung innerhalb des Hämoglobins. Auch die Beobachtung, dass es keine signifikanten Unterschiede zwischen der Radonlöslichkeit in Albumin- und Hämoglobin-Lösungen gibt, spricht gegen eine gezielte Anlagerung im Hämoglobinmolekül.

Um zu überprüfen, ob die Wechselwirkungen zwischen dem Protein und Wasser eine entscheidende Rolle spielen, wurde die Löslichkeit von Radon in hitzedenaturiertem Hämoglobin (12 %) bestimmt und eine signifikant niedrigere Löslichkeit gemessen. Durch das Erhitzen der Proteinlösung wird die gefaltete Struktur des Hämoglobins zerstört und durch Wechselwirkungen zwischen den Proteinen kann es dann zur Formierung unlöslicher Aggregate kommen [124]. Dies scheint die Ordnung der Proteinlösung zu erhöhen und dadurch die Löslichkeit von Radon zu senken. Eine weitere Betrachtung der Löslichkeit von Radon in Blutkomponenten und den Protein-Lösungen kann in den Arbeiten von Heddrich und Palkowski nachgelesen werden [81, 87].

Um die von der ICRP angenommene Additivität zu überprüfen und die potentiellen Einflussfaktoren zu reduzieren, sollte die Löslichkeit in Ölsäure, 1-Pentanol sowie einer 1:1 Mischung der beiden Flüssigkeiten gemessen werden. Hierbei zeigte sich eine deutliche Diskrepanz zwischen

der berechneten und der experimentell bestimmten Löslichkeit in der Mischung. Während experimentell ein Wert von  $S_{\text{Experimentell}} = 10,13 \pm 1,58 \frac{\text{Bq}}{\text{g}} / \frac{\text{Bq}}{\text{ml}}$  bestimmt wurde, ist der berechnete Wert mit  $S_{\text{Rechnung}} = 5,39 \frac{\text{Bq}}{\text{g}} / \frac{\text{Bq}}{\text{ml}}$  nur etwa halb so groß (siehe Kapitel 4.5).

Wird die Additivität der einzelnen Komponenten angenommen, dann wird jeweils nur die Wechselwirkung zwischen Radon und Ölsäure (Lösungsmittel 1) und Radon und 1-Pentanol (Lösungsmittel 2) berücksichtigt. Dieses Modell vernachlässigt jedoch die Wechselwirkungen zwischen den beiden Lösungsmitteln, was die Löslichkeit jedoch ebenfalls beeinflusst.

Eine thermodynamische Betrachtung der Henry-Konstanten eines Gases in einem Flüssigkeitsgemisch aus zwei Komponenten liefert folgenden Zusammenhang [125]:

$$\ln(H_{\text{Gas,Mischung}}) = \chi_1 \ln(H_{\text{Gas,1}}) + \chi_2 \ln(H_{\text{Gas,2}}) - \alpha_{1,2} \chi_1 \chi_2 \quad (5.4)$$

Hierbei entsprechen die Indizes der jeweiligen Komponente (Gas = Gas, Mischung = Mischung der Flüssigkeiten, 1 = Lösungsmittel 1, 2 = Lösungsmittel 2), H den unterschiedlichen Henry-Konstanten,  $\chi$  entspricht dem Anteil der Flüssigkeit an der Mischung und  $\alpha$  beschreibt einen experimentell bestimmten Koeffizienten, der die jeweilige Mischung mit der freien Gibbs-Energie korreliert.

Hier wird auch mathematisch der Einfluss der Wechselwirkung der beiden Lösungsmittel untereinander ( $\alpha_{1,2} \chi_1 \chi_2$ ) auf die Henry-Konstante sichtbar. Zusätzlich wäre selbst bei einer idealen Mischung der beiden Flüssigkeiten der Verlauf der Henry-Konstanten eine exponentielle und keine lineare Funktion der Zusammensetzung der Einzelkomponenten [125].

Eine vollständige thermodynamische Behandlung der Löslichkeit von Radon in einzelnen Komponenten wird in dieser Arbeit nicht behandelt. Dennoch konnte mit den Messungen in Vollblut, in Protein-Lösungen und in der Mischung aus Ölsäure und 1-Pentanol keine Additivität bestätigt werden. Diese Erkenntnis ist von großer Bedeutung für den Strahlenschutz und zeigt die Notwendigkeit der experimentellen Bestimmung der Löslichkeit von Radon in unterschiedlichem Gewebe. Untersuchungen zur Löslichkeit von Radon in Gewebe konnten ebenfalls keinen klaren Zusammenhang zwischen der Gewebezusammensetzung und der Löslichkeit feststellen [7]. Hierbei wurde insbesondere der Fett- und Wasseranteil an der jeweiligen Gewebeart berücksichtigt, wobei bei einer Additivität davon auszugehen wäre, dass die Löslichkeit von Radon in Gewebe mit hohem Wasseranteil geringer ist als in Gewebe mit einem hohen Fettanteil. Ist die tatsächliche Löslichkeit von Radon deutlich größer, als die unter der Annahme der Additivität berechnete, dann führt dies dazu, dass das Risiko deutlich unterschätzt wird. Dies ist insbesondere für Gewebe wie Knochenmark oder auch Gehirn von großer Bedeutung, da dort besonders empfindliche Zellen existieren, deren Schädigung weitreichende Folgen für den gesamten Organismus haben kann.

## 6. Ausblick

Die Ergebnisse, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit erzielt wurden, können in vielfältiger Weise als Anknüpfungspunkt für weitere Untersuchungen genutzt werden.

Insbesondere die Depositionsmessungen im Lungenmodell bieten viel Potential für weiterführende Experimente. Hierbei kann einerseits das Lungenmodell erweitert und realistischer gestaltet werden, andererseits können weitere Atemparameter variiert werden.

Die Erweiterung des Modells ist zum einen durch die Ergänzung eines Abschnitts des Nasen-Rachen-Raums, zum anderen durch die Hinzunahme weiterer Bifurkationen möglich. In Simulationen konnten im Nasen-Rachen-Raum entstehende Turbulenzen und Sekundärströmungen bestimmt werden [109, 110], wobei sie die Deposition beeinflussen können. Ebenfalls wurde simuliert, dass die Aneinanderreihung mehrere Bifurkationen die Luftströmung beeinflusst [111]. Der neu entwickelte Messaufbau ermöglicht es, diese Einflussfaktoren auf die Deposition von freien Zerfallsprodukten unter oszillatorischem Luftfluss zu messen. Dieser Richtungswechsel des Luftstroms zwischen den Phasen der Inspiration und Expiration hat zusätzlichen Einfluss auf das Strömungsverhalten, wobei Zeiträume existieren, in denen Luft in beide Richtungen strömt [105].

Um weitere geometrische Einflussfaktoren des Respirationstraktes auf die Deposition zu bestimmen, kann das Modell stärker an die native Form angepasst werden. Eine Möglichkeit dafür bietet die Anpassung der Trachea durch das Ergänzen von Trachealknorpeln. Genauso ist die Veränderung der Bifurkationsgeometrie möglich, die unter anderem durch die Verringerung des Durchmessers der Tochterzweige oder die Änderung des Winkels zu einem asymmetrischen Bifurkationswinkel umgesetzt werden könnte.

Neben geometrischen Veränderungen ist auch die Integration weiterer physiologischer Eigenschaften in das Modell möglich. Hierfür könnte das Innere des Modells beispielsweise mit einem Flüssigkeitsfilm überzogen werden, um den Mukus zu simulieren. Durch die Nutzung von biokompatiblen Material bei dem 3D Druck des Modells könnte zusätzlich die Möglichkeit geschaffen werden, Zellen auf der Oberfläche des Modells zu kultivieren, um diese anschließend zu exponieren und die induzierten Schäden zu analysieren.

Der Einfluss von Zigarettenrauch auf die Größenverteilung und die Deposition der Radon-Zerfallsprodukte könnte in dem neu entwickelten Modell untersucht werden. Hierfür müsste lediglich zusätzlich zu Radon auch Zigaretten-Rauch in die Radonkammer eingeleitet werden. Hier könnte im ersten Schritt der Einfluss des Rauchs auf die Größenverteilung der Radon-Zerfallsprodukte untersucht werden und anschließend die synergistische Wirkung in einem anatomischen Modell mit Zellen bestimmt werden.

Die Bestimmung der Löslichkeit in einer Mischung aus zwei Flüssigkeiten zeigte, dass sich diese nicht basierend auf den Werten der jeweiligen Löslichkeit als gewichteter Mittelwert berechnen lässt. Die aktuell genutzten Modelle, die im Strahlenschutz von der ICRP empfohlen werden [10], nutzen allerdings diese Art der Berechnung, um unbekannte Gewebe-Blut Verteilungskoeffizienten zu bestimmen. Die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse zeigen, dass die

biokinetischen Modelle Eingabeparameter zur Bestimmung der Dosis nutzen, die von den hier gemessenen Werten abweichen. Die berechnete Dosis ist daher fehlerbehaftet und das tatsächliche Risiko wird möglicherweise unterschätzt.

Um die Genauigkeit der für die biokinetischen Modelle notwendigen Gewebe-Blut Verteilungskoeffizienten zu verbessern, sind zwei unterschiedliche Ansätze möglich. Einerseits kann die Löslichkeit in verschiedenen Geweben experimentell bestimmt werden, andererseits kann zur Berechnung der Koeffizienten eine thermodynamische Betrachtung des Lösungsvorgangs von Radon in Gewebe in Betracht gezogen werden.

Die experimentelle Bestimmung der Löslichkeit in Gewebe könnte mit einer Abwandlung des hier genutzten und etablierten Messprotokoll durchgeführt werden. Die Exposition von Gewebe ist allerdings aufgrund ihrer Beschaffenheit herausfordernder. Während bei Flüssigkeiten die Oberfläche homogen ist, kann dies bei festen Proben nicht gewährleistet werden. Zudem wäre es nicht möglich, das gesamte Probengefäß vollständig mit Gewebe zu füllen. Diese beiden experimentellen Einschränkungen würden bei dem Verschluss der Probe in der Radonkammer dazu führen, dass ein Einschluss radonhaltiger Luft nicht ausgeschlossen werden kann. Um dies zu verhindern, könnten auf eine bereits in vorangegangenen Arbeiten genutzte Methode zurückgegriffen werden. Dafür wird die Gewebeprobe in einem Gefäß in der Radonkammer für eine Stunde exponiert, die Kammer anschließend für fünf Minuten mit Luft gespült und die Probe danach in ein separates Gefäß überführt und luftdicht verschlossen. Hierbei wird keine radonhaltige Luft in dem Gefäß mit eingeschlossen, Radon kann jedoch während des Spülvorgangs der Kammer aus der Probe diffundieren und die gemessenen Werte unterschätzen die tatsächliche Löslichkeit.

Es ist davon auszugehen, dass eine thermodynamische Betrachtung des Lösungsvorgangs von Radon in Gewebe nicht zielführend ist. Wie in Formel 5.4 beschrieben, beruht die Berechnung der Henry-Konstanten auf einem experimentell bestimmten Koeffizienten ( $\alpha$ ), der die Korrelation zwischen der Mischung und der freien Gibbs-Energie abbildet. Dieser müsste daher experimentell gemessen werden, um anschließend auf thermodynamische Berechnungen zurückgreifen zu können. Außerdem ist die Zusammensetzung von Gewebe sehr komplex und beinhaltet neben einer Vielzahl an Molekülen auch die klare Organisation in Form von Zellen und den darin enthaltenen Zellorganellen. Die experimentelle Bestimmung der Löslichkeit stellt daher eine bessere Methode zur Optimierung der Qualität der Gewebe-Blut Verteilungskoeffizienten dar. Sie sollte in zukünftigen Experimenten genutzt werden, um zu einer verbesserten Dosimetrie nach Radonexposition beizutragen.

## Literatur

- [1] European Commission. Joint Research Centre. *European atlas of natural radiation*. Hrsg. von Giorgia Cinelli, Marc De Cort und Tore Tollefsen. Publications Office of the European Union, 2019.
- [2] Fatiha El Ghissassi et al. “A review of human carcinogens—Part D: radiation”. In: *The Lancet Oncology* 10.8 (2009), S. 751–752.
- [3] Andreas Maier et al. “Radon Exposure—Therapeutic Effect and Cancer Risk”. In: *International Journal of Molecular Sciences* 22.1 (2020), S. 316.
- [4] Akihiro Sakoda et al. “Physiologically Based Pharmacokinetic Modeling of Inhaled Radon to Calculate Absorbed Doses in Mice, Rats, and Humans”. In: *Journal of Nuclear Science and Technology* 47.8 (2010), S. 731–738.
- [5] A. Khursheed. “Doses to Systemic Tissues from Radon Gas”. In: *Radiation Protection Dosimetry* 88.2 (2000), S. 171–171.
- [6] Franziska Papenfuß et al. “In-vivo dose determination in a human after radon exposure: proof of principle”. In: *Radiation and Environmental Biophysics* 61.2 (2022), S. 279–292.
- [7] Annika Hinrichs et al. “Radon Solubility in Different Tissues after Short Term Exposure”. In: *International Journal of Environmental Research and Public Health* 20.3 (2023), S. 1773.
- [8] E. Nussbaum und J. B. Hursh. “Radon Solubility in Rat Tissues”. In: *Science* 125.3247 (1957), S. 552–553.
- [9] Yuu Ishimori et al. “Measurements of radon activity concentration in mouse tissues and organs”. In: *Radiation and Environmental Biophysics* 56.2 (Jan. 2017), S. 161–165.
- [10] ICRP. “Occupational Intakes of Radionuclides: Part 3. ICRP Publication 137”. In: *Annals of the ICRP* 46.3-4 (2017), S. 1–486.
- [11] B O Stuart. “Deposition and clearance of inhaled particles.” In: *Environmental Health Perspectives* 55 (1984), S. 369–390.
- [12] W. Hofmann, T. Heistracher und I. Balásházy. “Deposition patterns of inhaled radon decay products in human bronchial airway bifurcations”. In: *Environment International* 22 (1996), S. 935–940.
- [13] Imre Balásházy, Werner Hofmann und Thomas Heistracher. “Local particle deposition patterns may play a key role in the development of lung cancer”. In: *Journal of Applied Physiology* 94.5 (2003), S. 1719–1725.
- [14] James E. Martin. *Physics for Radiation Protection*. Wiley-VCH Verlag GmbH, 2013, S. 670.
- [15] C. Amsler et al. (Particle Data Group). “Review of Particle Physics”. In: *Physics Letters B* 667, 1 (2008).
- [16] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik 4*. Springer Berlin Heidelberg, 2017.

- [17] Hermann Kolanoski und Norbert Wermes. *Teilchendetektoren*. Springer Berlin Heidelberg, 2016.
- [18] Klaus Bethge, Gertrud Walter und Bernhard Wiedemann. *Kernphysik*. Springer Berlin Heidelberg, 2008.
- [19] Hanno Krieger. *Grundlagen der Strahlungsphysik und des Strahlenschutzes*. Springer Berlin / Heidelberg, 2023.
- [20] ICRP. “The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103”. In: *Annals of the ICRP* 37 (2-4) (2007).
- [21] Wolfgang Schlegel, Christian P. Karger und Oliver Jäkel, Hrsg. *Medizinische Physik: Grundlagen – Bildgebung – Therapie – Technik*. Springer Berlin Heidelberg, 2018.
- [22] Eric J. Hall und Amato J. Giaccia. *Radiobiology for the Radiologist*. 8. Aufl. Wolters Kluwer Health, 2018, S. 624.
- [23] Robert F. Schmidt, Florian Lang und Manfred Heckmann, Hrsg. *Physiologie des Menschen. Mit Pathophysiologie*. 31. Aufl. Springer Medizin Verlag Heidelberg, 2011, S. 979.
- [24] Karl R. Aigner und Frederick O. Stephens, Hrsg. *Onkologie Basiswissen*. Springer Berlin Heidelberg, 2016.
- [25] ICRP. “Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60”. In: *Annals of the ICRP* 21 (1-3) (1990).
- [26] S Darby et al. “Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies”. In: *BMJ* 330.7485 (2004), S. 223.
- [27] <https://www.bfs.de/SharedDocs/Bilder/BfS/DE/ion/umwelt/radon-karte-innenraeume.jpg>. abgerufen am: 06.01.24.
- [28] National Nuclear Data Center. [https : //www.nndc.bnl.gov/nudat3/](https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/). abgerufen am: 11.10.23.
- [29] Franziska Papenfuß. “Physikalische Parameter bei der Inkorporation von Radon und seinen Folgeprodukten im Modell und Organismus”. Dissertation. TU Darmstadt, 2021.
- [30] B. F Peterman und C. J. Perkins. “Dynamics of Radioactive Chemically Inert Gases in the Human Body”. In: *Radiation Protection Dosimetry* (1988).
- [31] Rich Leggett et al. “A generic biokinetic model for noble gases with application to radon”. In: *Journal of Radiological Protection* 33.2 (2013), S. 413–432.
- [32] ICRP. “Report on the Task Group on Reference Man. ICRP Publication 23”. In: *Pergamon Press, Oxford* (1975).
- [33] Albrecht Falkenbach et al. “Radon therapy for the treatment of rheumatic diseases?review and meta-analysis of controlled clinical trials”. In: *Rheumatology International* 25.3 (2003), S. 205–210.
- [34] Annegret Franke, Lothar Reiner und Karl-Ludwig Resch. “Long-term benefit of radon spa therapy in the rehabilitation of rheumatoid arthritis: a randomised, double-blinded trial”. In: *Rheumatology International* 27.8 (2007), S. 703–713.
- [35] Astrid van Tubergen et al. “Combined spa–exercise therapy is effective in patients with ankylosing spondylitis: a randomized controlled trial”. In: *Arthritis & Rheumatism* 45.5 (2001), S. 430–438.

- [36] T. Kataoka. “Study of antioxidative effects and anti-inflammatory effects in mice due to low-dose X-irradiation or radon inhalation”. In: *Journal of Radiation Research* 54.4 (2013), S. 587–596.
- [37] E.M. Wellisch. “LII. The distribution of the active deposit of radium in an electric field.–IP”. In: *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 26.154 (1913), S. 623–635.
- [38] J. Porstendorfer und T. T. Mercer. “Influence of Electric Charge and Humidity Upon the Diffusion Coefficient of Radon Decay Products”. In: *Health Physics* 37.2 (1979), S. 191–199.
- [39] Anthony Busigin et al. “The Nature of Unattached RaA (218Po) Particles”. In: *Health Physics* 40.3 (1981), S. 333–343.
- [40] Kai Dee. Chu und Philip K. Hopke. “Neutralization kinetics for polonium-218”. In: *Environmental Science & Technology* 22.6 (1988), S. 711–717.
- [41] V. Dankelmann, A. Reineking und J. Porstendörfer. “Determination of Neutralisation Rates of  $^{218}\text{Po}$  Ions in Air”. In: *Radiation Protection Dosimetry* 94.4 (2001), S. 353–357.
- [42] Gregory Frey, Philip K. Hopke und James J. Stukel. “Effects of Trace Gases and Water Vapor on the Diffusion Coefficient of Polonium-218”. In: *Science* 211.4481 (1981), S. 480–481.
- [43] Scott D. Goldstein und Philip K. Hopke. “Environmental neutralization of polonium-218”. In: *Environmental Science & Technology* 19.2 (1985), S. 146–150.
- [44] J Porstendörfer. “Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air”. In: *Journal of Aerosol Science* 25.2 (1994), S. 219–263.
- [45] [https://www.dwd.de/DE/forschung/atmosphaerenbeob/zusammensetzung\\_atmosphaere/aerosol/inh\\_nav/groessenverteilung\\_node.html](https://www.dwd.de/DE/forschung/atmosphaerenbeob/zusammensetzung_atmosphaere/aerosol/inh_nav/groessenverteilung_node.html). abgerufen am: 23.01.24.
- [46] J. Porstendörfer. “Physical Parameters and Dose Factors of the Radon and Thoron Decay Products”. In: *Radiation Protection Dosimetry* 94.4 (2001), S. 365–373.
- [47] W. Jacobi. “Activity and Potential Alpha-energy of 222Radon and 220Radon-daughters in Different Air Atmospheres”. In: *Health Physics* 22.5 (1972), S. 441–450.
- [48] D Nikezić und N Stevanović. “Room Model With Three Modal Distributions Of Attached Radon Progeny”. In: *Health Physics* 87.4 (2004), S. 405–409.
- [49] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik 1: Mechanik und Wärme*. Springer Berlin Heidelberg, 2021.
- [50] Chantal Darquenne. “Deposition Mechanisms”. In: *Journal of Aerosol Medicine and Pulmonary Drug Delivery* 33.4 (2020), S. 181–185.
- [51] A. Einstein. “Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen”. In: *Annalen der Physik* 322.8 (1905), S. 549–560.
- [52] S.G Jennings. “The mean free path in air”. In: *Journal of Aerosol Science* 19.2 (1988), S. 159–166.
- [53] E. Cunningham. “On the Velocity of Steady Fall of Spherical Particles through Fluid Medium”. In: *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 83.563 (1910), S. 357–365.

- [54] Strahlenschutzkommission. *Band 47: Leitfaden zur Messung von Radon, Thoron und ihren Zerfallsprodukten*. Hrsg. von Olaf Sarenio. Urban und Fischer, 2002.
- [55] Kulwant Singh et al. “Variation of radon (Rn) progeny concentrations in outdoor air as a function of time, temperature and relative humidity”. In: *Radiation Measurements* 39.2 (2005), S. 213–217.
- [56] E. F. Rudnick S. N.; Maher. “Surface Deposition of  $^{222}\text{Rn}$  Decay Products With and Without Enhanced Air Motion”. In: *Health Physics* 51.3 (1986), S. 283–293.
- [57] L. Morawska und M. Jamriska. “Deposition of radon progeny on indoor surfaces”. In: *Journal of Aerosol Science* 27.2 (1996), S. 305–312.
- [58] J. Porstendörfer, P. Pagelkopf und M. Gründel. “Fraction of the positive  $^{218}\text{Po}$  and  $^{214}\text{Pb}$  clusters in indoor air”. In: *Radiation Protection Dosimetry* 113.3 (2005), S. 342–351.
- [59] Karl Zilles. *Anatomie*. Springer Verlag, 2010.
- [60] ICRP. “Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. ICRP Publication 66”. In: *Annals of the ICRP* 24 (1-3) (1994).
- [61] Gerhard Thews und Peter Vaupel. *Vegetative Physiologie*. Springer Berlin, Heidelberg, 2005.
- [62] ICRP. “Occupational Intakes of Radionuclides: Part 1. ICRP Publication 130”. In: *Annals of the ICRP* 44(2) (2015).
- [63] P. Fojtík et al. “Radon inhalation experiments to test radon exhalation kinetics”. In: *Radiation Protection Dosimetry* 191.2 (2020), S. 176–180.
- [64] Jan C. Behrends et al. *Duale Reihe Physiologie*. Georg Thieme Verlag KG, 2021.
- [65] Robert Sturm. “Spatial visualization of theoretical nanoparticle deposition in the and human respiratory tract”. In: *Annals of Translational Medicine* 3.21 (2015).
- [66] W. Hofmann et al. “Stochastic model of ultrafine particle deposition and clearance in the human respiratory tract”. In: *Radiation Protection Dosimetry* 105.1–4 (2003), S. 77–79.
- [67] W. Hofmann et al. “3. Radon and Radon Progeny Inhalation and Resultant Doses”. In: *Journal of the ICRU* 12.2 (2012), S. 29–53.
- [68] Umre Balásházy und Werner Hofmann. “Particle deposition in airway bifurcations—I. Inspiratory flow”. In: *Journal of Aerosol Science* 24.6 (1993), S. 745–772.
- [69] Günter Oberdörster, Eva Oberdörster und Jan Oberdörster. “Nanotoxicology: An Emerging Discipline Evolving from Studies of Ultrafine Particles”. In: *Environmental Health Perspectives* 113.7 (2005), S. 823–839.
- [70] Árpád Farkas. “Simulation of the effect of mucociliary clearance on the bronchial distribution of inhaled radon progenies and related cellular damage using a new deposition and clearance model for the lung”. In: *Radiation and Environmental Biophysics* 59.4 (2020), S. 651–661.
- [71] Imre Balásházy und Werner Hofmann. “Particle deposition in airway bifurcations—II. Expiratory flow”. In: *Journal of Aerosol Science* 24.6 (1993), S. 773–786.
- [72] Andreas Maier et al. “Experimental setup for radon exposure and first diffusion studies using gamma spectroscopy”. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 362 (2015), S. 187–193.

- [73] Pylon Electronics Inc. *Pylon Model RN-1025 Flow Through Radon Gas Source*. Revision 3. Pylon Electronics Inc. 147 Colonnade Rd, Ottawa, Kanada.
- [74] Andreas Maier. “Entwicklung einer Radonkammer und Messung der Radonlöslichkeit in Gewebe”. Diss. TU Darmstadt, 2015.
- [75] *Handbuch RTM2200 - RPM2200 - EQF3200 - EQF3220 - A<sup>2</sup>M4000*. SARAD GmbH. 2016.
- [76] SARAD GmbH. *Datenblatt EQF3220 Radon/Thoron Gas & Folgeprodukt-Monitor*. 2015.
- [77] *WO<sub>x</sub>-Aerosolgenerator Modell 7.860*. GRIMM Aerosol Technik GmbH & Co. KG.
- [78] <https://oedk.rice.edu/ApolloBVM-DIY>. abgerufen am: 21.07.22.
- [79] Annika Hinrichs et al. “Radon Progeny Adsorption on Facial Masks”. In: *International Journal of Environmental Research and Public Health* 19.18 (2022), S. 11337.
- [80] C. Mueller-Eckhardt. *Transfusionsmedizin und Immunhämatologie: Grundlagen; Therapie; Methodik*. Hrsg. von Volker Kiefel. Springer Berlin Heidelberg, 2011.
- [81] Marie-Luise Heddrich. “Bestimmung der Löslichkeit von Radon in Bestandteilen des humanen Blutes”. Bachelorarbeit. Goethe Universität Frankfurt am Main, 2022.
- [82] Elvira P. Sanjon et al. “A combined experimental and theoretical study of radon solubility in fat and water”. In: *Scientific Reports* 9.1 (2019).
- [83] <https://www.fao.org/food/food-safety-quality/scientific-advice/jecfa/jecfa-flav/details/en/c/68/>.
- [84] Annika Hinrichs. “Radonexposition biologischer Proben - Diffusionsverhalten und Dosimetrie”. Magisterarb. Goethe Universität Frankfurt am Main, 2020.
- [85] Mirion Technologies (Canberra) Inc. *Datenblatt Germanium detectors*. 2016.
- [86] *Genie<sup>TM</sup> 2000 Spectroscopy Software Customization Tools*. Mirion Technologies (Canberra) Inc. 2013.
- [87] Oliver Palkowski. “Mechanismen der Radonverteilung im menschlichen Körper”. Bachelorarbeit. Goethe Universität Frankfurt am Main, 2023.
- [88] Brigitte Klose und Heinz Klose. *Meteorologie: Eine interdisziplinäre Einführung in die Physik der Atmosphäre*. Springer Berlin Heidelberg, 2015.
- [89] K.N. Yu et al. “Concentrations of <sup>222</sup>Rn, <sup>220</sup>Rn and their progeny in residences in Hong Kong”. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 45.3 (1999), S. 291–308.
- [90] K.N Yu et al. “<sup>222</sup>Rn, <sup>220</sup>Rn and their progeny concentrations in offices in Hong Kong”. In: Bd. 48. 2. Elsevier BV, 2000, S. 211–221.
- [91] Mirjana Čujić et al. “Radon-222: environmental behavior and impact to (human and non-human) biota”. In: *International Journal of Biometeorology* 65.1 (2020), S. 69–83.
- [92] Tieh-Chi Chu und Ho-Ling Liu. “Simulated equilibrium factor studies in radon chamber”. In: *Applied Radiation and Isotopes* 47.5–6 (1996), S. 543–550.
- [93] J.K.C. Leung, C.W. Ho und M.Y.W. Tso. “Deposition behaviour of progeny on surfaces”. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 443.2–3 (2000), S. 546–556.
- [94] Yung Sung Cheng. “Wall Deposition of Radon Progeny and Particles in a Spherical Chamber”. In: *Aerosol Science and Technology* 27.2 (1997), S. 131–146.

- [95] Hermann Sicius. “Edelgase: Elemente der achten Hauptgruppe”. In: *Handbuch der chemischen Elemente*. Springer Berlin Heidelberg, 2022, S. 1–39.
- [96] E.O. Knutson et al. “Measurements of Radon Progeny Activity on Typical Indoor Surfaces”. In: *Radiation Protection Dosimetry* 45.1–4 (1992), S. 313–317.
- [97] Ayman M. Abdalla und Ali Al-Hajry. “Radon irradiation chamber and its applications”. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 786 (2015), S. 78–82.
- [98] K.W. Tu und E.O. Knutson. “Indoor Radon Progeny Particle Size Distribution Measurements Made with Two Different Methods”. In: *Radiation Protection Dosimetry* 24.1–4 (1988), S. 251–255.
- [99] A.H. Biermann und S.R. Sawyer. *Attachment of radon progeny to cigarette-smoke aerosols*. Techn. Ber. 1995.
- [100] Mohammad S. Islam et al. “A Review of Respiratory Anatomical Development, Air Flow Characterization and Particle Deposition”. In: *International Journal of Environmental Research and Public Health* 17.2 (2020), S. 380.
- [101] Jingliang Dong et al. “Ultrafine particle deposition in a realistic human airway at multiple inhalation scenarios”. In: *International Journal for Numerical Methods in Biomedical Engineering* 35.7 (Mai 2019).
- [102] C. Kleinstreuer und Z. Zhang. “Airflow and Particle Transport in the Human Respiratory System”. In: *Annual Review of Fluid Mechanics* 42.1 (2010), S. 301–334.
- [103] Joseph Spurk und Nuri Aksel. *Strömungslehre: Einführung in die Theorie der Strömungen*. Springer Berlin Heidelberg, 2019.
- [104] Sahar Jalal et al. “Three-dimensional steady and oscillatory flow in a double bifurcation airway model”. In: *Physical Review Fluids* 3.10 (2018), S. 103101.
- [105] Jiwoong Choi et al. “Numerical Study of High-Frequency Oscillatory Air Flow and Convective Mixing in a CT-Based Human Airway Model”. In: *Annals of Biomedical Engineering* 38.12 (2010), S. 3550–3571.
- [106] PH Haskin und LR Goodman. “Normal tracheal bifurcation angle: a reassessment”. In: *American Journal of Roentgenology* 139.5 (1982), S. 879–882.
- [107] Werner Hofmann, Imre Balásházy und Thomas Heistracher. “The Relationship between Secondary Flows and Particle Deposition Patterns in Airway Bifurcations”. In: *Aerosol Science and Technology* 35.6 (2001), S. 958–968.
- [108] Kaustav Pradhan und Abhijit Guha. “Fluid dynamics of a bifurcation”. In: *International Journal of Heat and Fluid Flow* 80 (Dez. 2019), S. 108483.
- [109] A. J. Banko et al. “Three-dimensional inspiratory flow in the upper and central human airways”. In: *Experiments in Fluids* 56.6 (Mai 2015).
- [110] Manikantam G. Gaddam und Arvind Santhanakrishnan. “Effects of Varying Inhalation Duration and Respiratory Rate on Human Airway Flow”. In: *Fluids* 6.6 (2021), S. 221.
- [111] Z. Zhang und C. Kleinstreuer. “Transient airflow structures and particle transport in a sequentially branching lung airway model”. In: *Physics of Fluids* 14.2 (2002), S. 862–880.
- [112] A. George und A. J. Breslin. “Deposition of Radon Daughters in Humans Exposed to Uranium Mine Atmospheres”. In: *Health Physics* 17.1 (1969), S. 115–124.

- [113] W. Li, J. Q. Xiong und B. S. Cohen. “The Deposition of Unattached Radon Progeny in a Tracheobronchial Cast as Measured with Iodine Vapor”. In: *Aerosol Science and Technology* 28.6 (1998), S. 502–510.
- [114] H. Shi et al. “Nanoparticle transport and deposition in bifurcating tubes with different inlet conditions”. In: *Physics of Fluids* 16.7 (2004), S. 2199–2213.
- [115] Imre Balásházy und Werner Hofmann. “Quantification of Local Deposition Patterns of Inhaled Radon Decay Products in Human Bronchial Airway Bifurcations”. In: *Health Physics* 78.2 (2000), S. 147–158.
- [116] J. Porstendörfer, G. Röbig und A. Ahmed. “Experimental determination of the attachment coefficients of atoms and ions on monodisperse aerosols”. In: *Journal of Aerosol Science* 10.1 (1979), S. 21–28.
- [117] Josabet Johana Arellano-Cotrino et al. “Effectiveness and Recommendations for the Use of Dental Masks in the Prevention of COVID-19: A Literature Review”. In: *Disaster Medicine and Public Health Preparedness* 15.5 (2020), e43–e48.
- [118] G. M. P. J. Costongs et al. “Short-Term and Long-Term Intra-Individual Variations and Critical Differences of Haematological Laboratory Parameters”. In: *Clinical Chemistry and Laboratory Medicine* 23.2 (1985).
- [119] Manjeera Mantina et al. “Consistent van der Waals Radii for the Whole Main Group”. In: *The Journal of Physical Chemistry A* 113.19 (2009), S. 5806–5812.
- [120] David R. Jacobson et al. “Measurement of radon and xenon binding to a cryptophane molecular host”. In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108.27 (Juni 2011), S. 10969–10973.
- [121] Hadley L. Conn. “Equilibrium distribution of radioxenon in tissue: xenon-hemoglobin association curve”. In: *Journal of Applied Physiology* 16.6 (1961), S. 1065–1070.
- [122] R. Larsen. *Beatmung Grundlagen und Praxis. Grundlagen und Praxis*. Springer Medizin, 2009, S. 442.
- [123] Carmelinda Savino et al. “Pattern of cavities in globins: The case of human hemoglobin”. In: *Biopolymers* 91.12 (2009), S. 1097–1107.
- [124] Daniel W. Woodall et al. “Melting of Hemoglobin in Native Solutions as measured by IMS-MS”. In: *Analytical Chemistry* 92.4 (2020), S. 3440–3446.
- [125] J. P. O’Connell und J. M. Prausnitz. “Thermodynamics of Gas Solubility in Mixed Solvents”. In: *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* 3.4 (1964), S. 347–351.
- [126] Jeremy M. Berg et al. *Stryer Biochemie*. Springer Spektrum Berlin, Heidelberg, 2017.
- [127] Yuzhen Ye und Adam Godzik. *Flexible structure alignment by chaining aligned fragment pairs allowing twists*. 2003.
- [128] Y. Zhang. “TM-align: a protein structure alignment algorithm based on the TM-score”. In: *Nucleic Acids Research* 33.7 (2005), S. 2302–2309.
- [129] Massimo Paoli et al. “Crystal Structure of T State Haemoglobin with Oxygen Bound At All Four Haems”. In: *Journal of Molecular Biology* 256.4 (1996), S. 775–792.
- [130] Roman Aranda et al. “Structural analysis of fish versus mammalian hemoglobins: Effect of the heme pocket environment on autooxidation and hemin loss”. In: *Proteins: Structure, Function, and Bioinformatics* 75.1 (2009), S. 217–230.

- [131] J. Park, M.-S. Kim und D.H. Shin. *Crystal structure of plasma-derived human serum albumin*. 2018.
- [132] Anna Bujacz. “Structures of bovine, equine and leporine serum albumin”. In: *Acta Crystallographica Section D Biological Crystallography* 68.10 (2012), S. 1278–1289.
- [133] David Sehnal et al. “Mol\* Viewer: modern web app for 3D visualization and analysis of large biomolecular structures”. In: *Nucleic Acids Research* 49.W1 (2021), W431–W437.
- [134] H. M. Berman et al. *The Protein Data Bank*. 2000.
- [135] Toni C. Stocker und Ingo Steinke. *Statistik Grundlagen und Methodik. Grundlagen und Methodik*. de Gruyter GmbH, Walter, 2016.

# A. Anhang

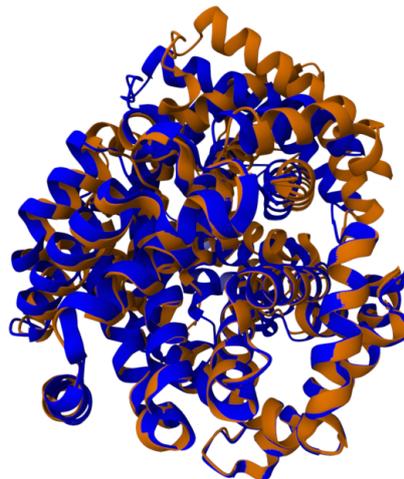
## A.1. Material und Methoden

### A.1.1. Vergleich humane und bovine Proteine

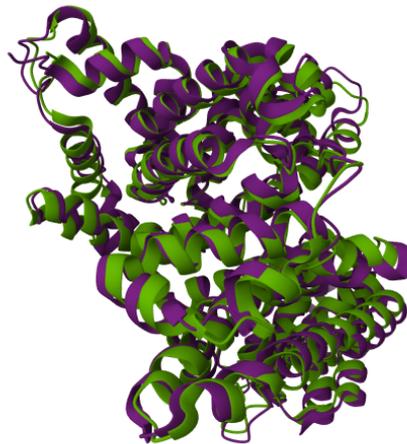
Proteine, die in unterschiedlichen Organismen eine ähnliche Funktion erfüllen haben meist auch eine ähnliche 3D Struktur [126]. Um dies für die Proteine, die im Rahmen der Experimente genutzt wurden zu überprüfen, wurde die Ähnlichkeit zwischen dem jeweiligen humanen und bovinen Protein mit Hilfe eines Online-Tools der RCSB PDB analysiert [127]. Dafür wurde der sogenannte Template Modeling (TM) Score berechnet, der die topologische Ähnlichkeit von zwei Proteinen beschreibt und im Bereich zwischen 0–1 liegt. Ein Wert von 1 entspricht dabei perfekter Übereinstimmung [128]. Die jeweiligen TM Scores sind in Tabelle A.1 gezeigt und ein visueller Vergleich ist in Abbildungen A.1 und A.2 dargestellt.

**Tabelle A.1.** Vergleich des Template Modeling (TM) Scores zur Bewertung der strukturellen Ähnlichkeit von Proteinen

Protein	Organismus, Struktur-ID	Proteinabschnitt	TM Score
Hämoglobin	Mensch, 1GZX [129]	Alpha-Untereinheit	0,99
	Rind, 2QSP [130]	Beta-Untereinheit	0,96
Albumin	Mensch, 5Z0B [131] Rind, 4F5S [132]	gesamtes Protein	0,96



**Abbildung A.1.** Vergleich der 3D Struktur von humanem (blau) [129] und bovinem (orange) Hämoglobin [130], Bilder aus RCSB PDB (RCSB.org) [133, 134]

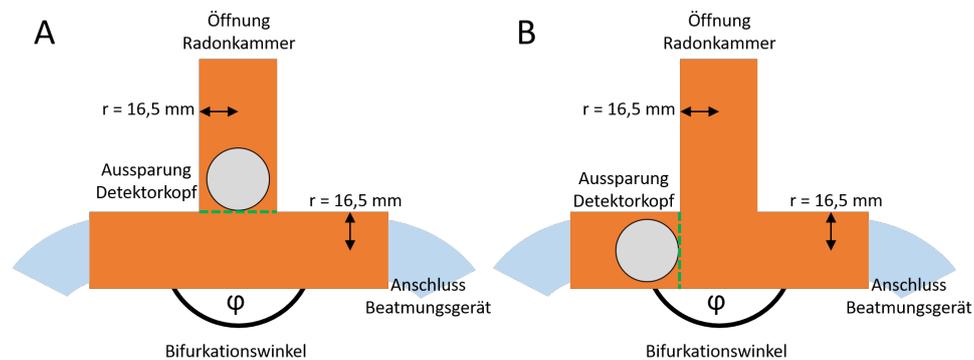


**Abbildung A.2.** Vergleich der 3D Struktur von humanem (grün) [131] und bovinem (lila) Albumin [132], Bilder aus RCSB PDB (RCSB.org) [133, 134]

Diese hohe Ähnlichkeit zwischen humanem und bovinem Protein verdeutlicht, dass die Übertragbarkeit der Ergebnisse aus Experimenten mit bovinen Proteinen auf den Menschen gegeben ist.

### A.1.2. Lungenmodell

Zur Untersuchung der Deposition in Abhängigkeit des Bifurkationswinkels wurde folgendes Modell mit einem Bifurkationswinkel von  $180^\circ$  genutzt:



**Abbildung A.3.** Geometrie der Bifurkationsmodelle zur Messung vor der Bifurkation (A) und nach der Bifurkation (B) bei einem Bifurkationswinkel  $\varphi = 180^\circ$ ; grüne Linie entspricht orthogonaler Geraden zur Abgrenzung der Bifurkation

## A.2. Ergebnisse

### A.2.1. Statistik

Zur Berechnung des Mittelwerts ( $\bar{x}$ ) und der Standardabweichung ( $\sigma$ ) wurden folgende Formeln genutzt [135]:

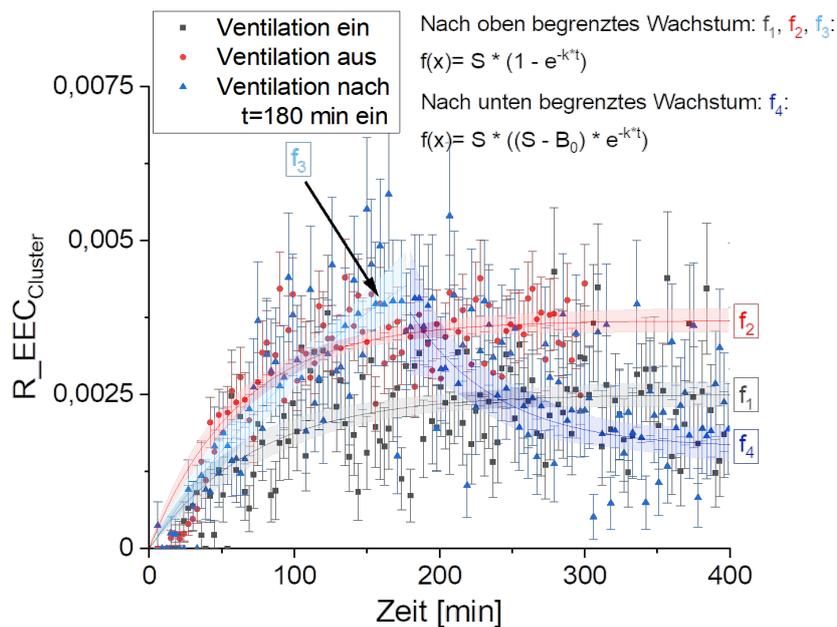
$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (\text{A.1})$$

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (\text{A.2})$$

### A.2.2. Charakterisierung Radonkammer

#### Ventilation

Die Cluster wurden durch die Ventilation der Radonkammer in ähnlicher Weise wie die freien Zerfallsprodukte reduziert. Ebenfalls zeigte das Experiment, bei dem der Ventilator erst nach  $t = 180$  min eingeschaltet wurde, dass die Cluster auf einen ähnlichen Wert absanken, wie wenn der Ventilator bereits zu Beginn angeschaltet war (Vergleich schwarze und dunkelblaue Kurve Abbildung A.4).



**Abbildung A.4.** R\_EEC der Cluster bei Variation der Ventilation, (T:  $22,4 \pm 0,2^\circ\text{C}$ , rH:  $42,2 \pm 6,2\%$ )

Die jeweiligen Fitparameter der Funktionen sind im Folgenden in Tabelle A.2 gezeigt:

**Tabelle A.2.** Fitparameter des begrenzten Wachstums der R\_EEC der Cluster bei unterschiedlicher Ventilation (T:  $22,4 \pm 0,2$  °C, rH:  $42,2 \pm 6,2$  %)

Experiment	S	k [ $\frac{1}{min}$ ]	B <sub>0</sub>
Ventilation ein (f <sub>1</sub> )	$0,0025 \pm 1,1 \cdot 10^{-4}$	$0,014 \pm 0,003$	–
Ventilation aus (f <sub>2</sub> )	$0,0037 \pm 1 \cdot 10^{-4}$	$0,0161 \pm 0,0016$	–
Ventilation nach t = 180 min ein (f <sub>3</sub> )	$0,008 \pm 0,003$	$0,005 \pm 0,003$	–
Ventilation nach t = 180 min ein (f <sub>4</sub> )	$0,0016 \pm 3 \cdot 10^{-4}$	$0,017 \pm 0,008$	$0,045 \pm 0,065$

Abbildung A.4 zeigt, dass die einzelnen Messfehler mit Werten von teilweise mehr als 100 % sehr groß waren. Die dadurch entstehende Schwankungsbreite der Messwerte erhöhte die Ungenauigkeit der Fits und somit auch die der berechneten Werte des R\_EEC der Cluster (siehe Tabelle A.3). Die Werte bei ausgeschaltetem Ventilator („Ventilation aus“, „Ventilation nach t=180 min ein“) für t = 180 min waren zwar in der gleichen Größenordnung, der Fehler überstieg hierbei jedoch deutlich den Wert des R\_EECs. Die gleiche Tendenz wurde für den R\_EEC bei Experimenten mit eingeschaltetem Ventilator („Ventilation ein“, „Ventilation nach t=180 min ein“) bei t = 360 min gemessen.

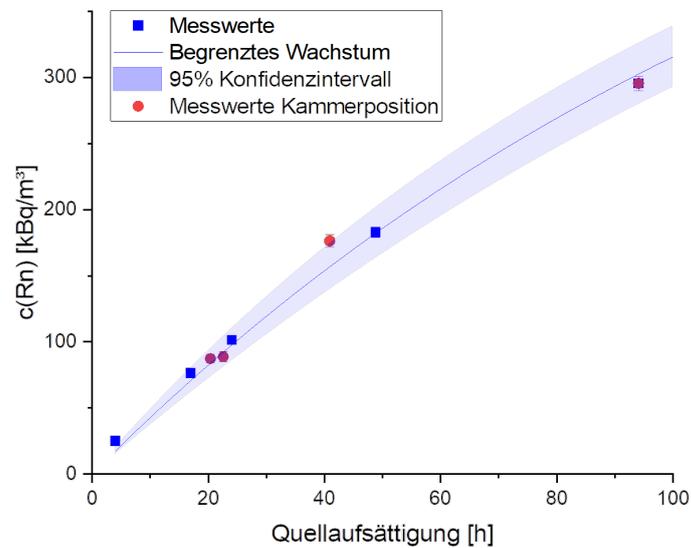
**Tabelle A.3.** Vergleich der Funktionswerte zum Zeitpunkt t = 180 min bei ausgeschaltetem Ventilator und zum Zeitpunkt t = 360 min bei angeschaltetem Ventilator

Ventilation	Experiment	Zeitpunkt	Berechneter R_EEC
Aus	Ventilation aus	180 min	$0,0034 \pm 0,0114$
	Ventilation nach t=180min ein		$0,0043 \pm 0,0132$
Ein	Ventilation nach t = 180min ein	360 min	$0,0017 \pm 0,0079$
	Ventilation an		$0,0025 \pm 0,0123$

Es waren zwar ähnliche Tendenzen wie bei den freien Zerfallsprodukten erkennbar, die Ergebnisse sollten aufgrund der Qualität der Einzelmesswerte jedoch lediglich als Trend gewertet werden.

### Kammerposition

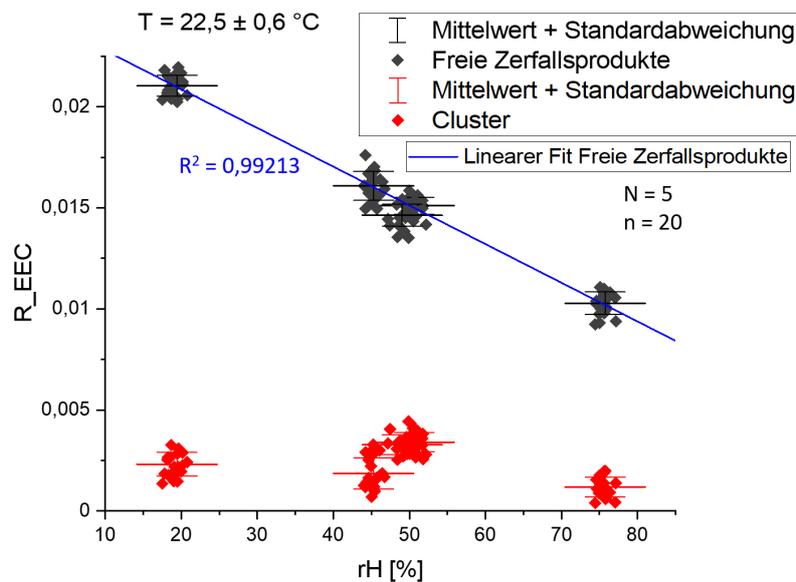
Um zu überprüfen, ob sich Radon gleichmäßig in der Radonkammer verteilt, wurden die gemessenen Radonaktivitätskonzentrationen ( $c(\text{Rn})$ ) mit den zu erwartenden Werten verglichen. Die Auftragung zeigte, dass es keine signifikanten Abweichungen gab (siehe Abbildung A.5).



**Abbildung A.5.** Gemessene Radonaktivitätskonzentration bei unterschiedlichen Positionen des Detektorkopfes (rot) im Vergleich zur erwarteten Radonaktivitätskonzentration bei entsprechender Quellaufsättigungsdauer (blau), ( $T: 22,6 \pm 0,5 \text{ } ^\circ\text{C}$ ,  $rH: 43,9 \pm 7,6 \%$ )

### Luftfeuchtigkeit

Nachfolgend wird die Auftragung der Einzelwerte des  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte und Cluster in Abhängigkeit der relativen Luftfeuchtigkeit gezeigt:



**Abbildung A.6.**  $R_{EEC}$  der freien Zerfallsprodukte (schwarz) mit linearem Fit (blau) und Cluster (rot) bei unterschiedlicher relativer Luftfeuchtigkeit ( $T: 22,5 \pm 0,6 \text{ } ^\circ\text{C}$ )

### A.3. Aerosolgenerator

Zur Veränderung der Aerosolgrößenverteilung wurden die verschiedenen Luftströme (Wolfram-Luft ( $Q_{\text{WO}_x}$ ), Träger-Luft ( $Q_{\text{Träger}}$ ), Verdünnungsluft ( $Q_{\text{Dil}}$ )) sowie die Dauer der Nutzung variiert. Dabei wurden folgende Einstellungen am Aerosolgenerator getestet:

**Tabelle A.4.** Einstellungen des Aerosolgenerators mit Wolfram-Luft ( $Q_{\text{WO}_x}$ ), Träger-Luft ( $Q_{\text{Träger}}$ ) und Verdünnungsluft ( $Q_{\text{Dil}}$ )

$Q_{\text{WO}_x}$ [ $\frac{l}{h}$ ]	$Q_{\text{Träger}}$ [ $\frac{l}{h}$ ]	$Q_{\text{Dil}}$ [ $\frac{l}{h}$ ]	Dauer [min]
5	200	0	10
5	200	0	20
5	200	35	10
5	200	50	10
5	350	0	10
5	350	0	30
9	350	0	10
9	350	400	10
9	350	400	25
12	350	0	15
12	350	0	20
12	350	400	25
12	450	0	10
12	450	0	20
12	450	300	10
12	450	350	15

### A.4. Geräte und Software

Gerät/Software	Hersteller
Radon-Quelle	RN-1025, Pylon Electronics, Ottawa, Kanada
Lüfter Radonkammer	F30LM012GK-9, Micronel AG, Tagelswangen, Deutschland
Radon-Thoron-Folgeproduktmonitor	EQF 3220, SARAD GmbH, Dresden, Deutschland
Aerosolgenerator	Wolfram-Oxid Generator, Modell 7860, GRIMM Aerosol Technik Ainring GmbH & Co KG, Ainring
3D Drucker	Ultimaker 3, Ultimaker B.V, Utrecht
3D Drucker	Raise3D Pro 3,
Auswertesoftware Radon-Thoron-Folgeproduktmonitor	dVISION V3 - Device Access Application for SARAD DACM Devices, SARAD GmbH, Dresden, Deutschland
CAD-Programm	FreeCAD Version 0.20.2.29603 Juergen Riegel, Werner Mayer, Yorik van Havre (2001-2022). Abrufbar unter <a href="http://www.freecadweb.org">http://www.freecadweb.org</a>
Germaniumdetektor	Mirion Technologies (Canberra) Inc., Atlanta (GA), USA
Auswertesoftware Gamma-spektroskopie	GENIE 2000, Version 3.3, Mirion Technologies (Canberra) Inc., Atlanta (GA), USA

## A.5. Material Beatmungsgerät

Produkt	Produktname, Hersteller/ Lieferant
Mikrokontroller	Arduino Uno R3, Conrad Electronic SE, Hirschau
Linearführung	MGN12 150mm & MGN12H, HIWIN GmbH, Offenburg
Servomotor	2000 Series Dual Mode Servo (25-2, Torque), goBilda, Winfield (KS), USA
Display	Serial Liquid Crystal Display Module (NHD-0420D3Z-NSW-BBW-V3), Newhaven Display International Inc., Elgin, USA
Zahnstange	RS PRO Stahl Zahnstange, Modul 0.8, Frankfurt am Main
Zahnrad	2305 Series Brass, Modul 0.8, Servo Gear (25 Tooth Spline, 30 Tooth), goBilda, Winfield (KS), USA
Radondichter Beutel	Non Diffusing Gas Collection Bag 30 L Series 6030, Hans Rudolph Inc. Shawnee (KS), USA
Beatmungsbeutel	Ambu Spur 2, Ambu GmbH, Bad Nauheim

## A.6. Proben Löslichkeit

Probe	Hersteller/Lieferant
Vollblut	DRK-Blutspendedienst Baden-Württemberg - Hessen gemeinnützige GmbH, Mannheim, Deutschland
Erythrozytenkonzentrat	DRK-Blutspendedienst Baden-Württemberg - Hessen gemeinnützige GmbH, Mannheim, Deutschland
Gefrorenes Frischplasma	DRK-Blutspendedienst Baden-Württemberg - Hessen gemeinnützige GmbH, Mannheim, Deutschland
Hämoglobin (Rind)	Th. Geyer GmbH & Co. KG, Renningen, Deutschland
Albumin (Rind)	Carl Roth GmbH + Co. KG, Karlsruhe, Deutschland
Ölsäure	Omnilab-Laborzentrum GmbH & Co. KG
1-Pentanol	Thermo Fisher Scientific Inc., Waltham (MA), USA