

**rivm**

Rapport 610790011/2010  
R.O. Blaauboer

## Meting van $^{220}\text{Rn}$ en consequenties voor eerdere $^{222}\text{Rn}$ surveys

VERA-onderzoek

RIVM Rapport 610790011/2010

## **Meting van $^{220}\text{Rn}$ en consequenties voor eerdere $^{222}\text{Rn}$ -surveys**

VERA-onderzoek

R.O. Blaauboer

Contact:

R.O. Blaauboer

Laboratorium voor Stralingsonderzoek

Roelf.Blaauboer@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van de Directie Risicobeleid van DGM, in het kader van het BEST-programma - Beleidsondersteuning Straling.

© RIVM 2010

Delen uit deze publicatie mogen worden overgenomen op voorwaarde van bronvermelding: 'Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), de titel van de publicatie en het jaar van uitgave'.

## Rapport in het kort

### Meting van $^{220}\text{Rn}$ en consequenties voor eerdere $^{222}\text{Rn}$ -surveys

Er komt minder radioactief radongas ( $\text{Rn-222}$ ) in nieuwbouwwoningen voor dan op basis van eerdere radonsurveys werd aangenomen. De oude radondetectoren blijken na onderzoek ook gevoelig voor radioactief thoron ( $\text{Rn-220}$ ), waarvan meer aanwezig is dan werd gedacht.

Dit volgt uit een nader onderzoek aan deze detectoren, dat plaatsvond naar aanleiding van een landelijke survey naar de stralingsbelasting in Nederlandse woningen die tussen 1994 en 2003 zijn gebouwd.

Detectoren die voor internationale vergelijkingsstudies naar radon worden gebruikt, zijn tot nu alleen op dit edelgas ingesteld. Dat sommige typen detector behalve radon ook thoron meten, valt dan niet op. Net als in Nederland is er internationaal een toegenomen aandacht voor thoron vanwege survey-resultaten die sterk door thoron bleken te zijn beïnvloed.

Het thoron lijkt afkomstig van een (veel voorkomend) bouw materiaal met verhoogde thoronuitstoot, mogelijk een afwerk materiaal. Inmiddels is gebleken dat er gedurende een aantal jaar in Nederland stucmateriaal is toegepast dat door het ingrediënt fosfogips meer thoron bevatte. Mogelijk geven echter ook andere afwerk materialen aanleiding tot een verhoging.

Een groot deel van de dosis straling die mensen binnenshuis ontvangen, is het gevolg van het inademen van de radioactieve vervalproducten van radon en thoron. Radon en thoron worden van nature gevormd in bodem- en bouwmaterialen. Een deel daarvan komt in de woning terecht, omdat ze gasvormig zijn. Blootstelling aan straling in de woning is verantwoordelijk voor ruwweg de helft van de stralingsbelasting die Nederlandse burgers gemiddeld door het jaar heen oplopen.

Dit onderzoek werd uitgevoerd in opdracht van het ministerie van VROM.

#### Trefwoorden:

$^{220}\text{Rn}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ , radon, thoron, meetmethode, detector

## Abstract

### **$^{220}\text{Rn}$ measurements and implications for earlier surveys of $^{222}\text{Rn}$**

The concentration of radioactive radon gas (Rn-222) encountered in newly constructed dwellings was lower than that expected from earlier surveys. An investigation into the response of the radon detectors used in these earlier surveys revealed that these were also sensitive to radioactive thoron (Rn-220), of which more appears to be present than originally assumed. This is the primary outcome of a detailed examination of the detectors that resulted from a national study on radiation exposure in Dutch dwellings constructed between 1994 and 2003.

Detectors used in international radon comparison studies have only been set to test for radon, not thoron. Consequently, in practice it is not immediately evident that some detectors actually measure thoron as well, which is also reported as radon. The increasing interest shown by the Netherlands for thoron, provoked by survey results that appear to have been strongly affected by this radioactive isotope of radon, is mirrored by many other countries.

The thoron found in dwellings seems to originate from a (frequently used) building material, possibly a finishing material, which has a relatively high thoron exhalation rate. It has more recently been determined that for many years a type of plaster was used in the Netherlands that contained phosphogypsum, a material known for its high radon content. However, it is possible that other materials incorporated into finishing layers also contribute to higher indoor thoron levels.

A large portion of the total indoor exposure of occupants to radiation is from inhalation of radioactive decay products of radon and thoron. Radon and thoron are formed in the soil and earth-based building materials by radioactive decay and, because they are gaseous, they are able to diffuse into homes and other buildings. Exposure to ionizing radiation in the home accounts for approximately half of the average annual radiation dose received by a Dutch citizen,

This study was conducted by order of the Ministry of Housing, Spatial Planning and the Environment (VROM).

Key words:

$^{220}\text{Rn}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ , radon, thoron, measurement method, detector

# Inhoud

|                     |   |           |
|---------------------|---|-----------|
| <b>Samenvatting</b> |   | <b>6</b>  |
| <b>1</b>            | <b>Inleiding</b>  | <b>7</b>  |
| 1.1                 | Probleemstelling  | 7         |
| 1.2                 | Doelstelling  | 8         |
| <b>2</b>            | <b>Radon versus thoron</b>                                  | <b>9</b>  |
| 2.1                 | Halveringstijd en vervalproducten                           | 9         |
| 2.2                 | Vrijkomen uit bodem en bouw materiaal                       | 10        |
| 2.3                 | Algemene gegevens over blootstelling aan thoron             | 12        |
| <b>3</b>            | <b>Mogelijke oorzaken voor afwijkende meetresultaten</b>    | <b>14</b> |
| 3.1                 | Vier mogelijke oorzaken                                     | 14        |
| 3.2                 | Onderbouwing thoroninvloed radondetectoren                  | 15        |
| <b>4</b>            | <b>Nader onderzoek naar thoron</b>                          | <b>17</b> |
| 4.1                 | Literatuuronderzoek   | 17        |
| 4.1.1               | Thoronmetingen  | 17        |
| 4.1.2               | Modellen  | 18        |
| 4.2                 | Meting van thoron in onderzoekspostelling                   | 18        |
| 4.2.1               | Meetmethoden en apparatuur                                  | 18        |
| 4.2.2               | Meetresultaten  | 20        |
| <b>5</b>            | <b>Consequenties voor meetresultaten in eerdere surveys</b> | <b>25</b> |
| 5.1                 | Meetresultaten in vorige surveys                            | 25        |
| 5.1.1               | Toename radon in jaren zeventig                             | 25        |
| 5.1.2               | Redenen voor toename (gerapporteerde) radonconcentratie     | 25        |
| 5.2                 | Consequenties van thoronmeting voor eerdere resultaten      | 26        |
| 5.3                 | De dosis en het risico van blootstelling van de bevolking   | 27        |
| <b>6</b>            | <b>Conclusies en aanbevelingen</b>                          | <b>29</b> |
| 6.1                 | Conclusies van het huidige onderzoek                        | 29        |
| 6.2                 | Consequenties voor andere onderzoeken                       | 29        |
| 6.3                 | Aanbevelingen voor nieuw onderzoek                          | 29        |
| <b>7</b>            | <b>Literatuur</b>   | <b>31</b> |

## Samenvatting

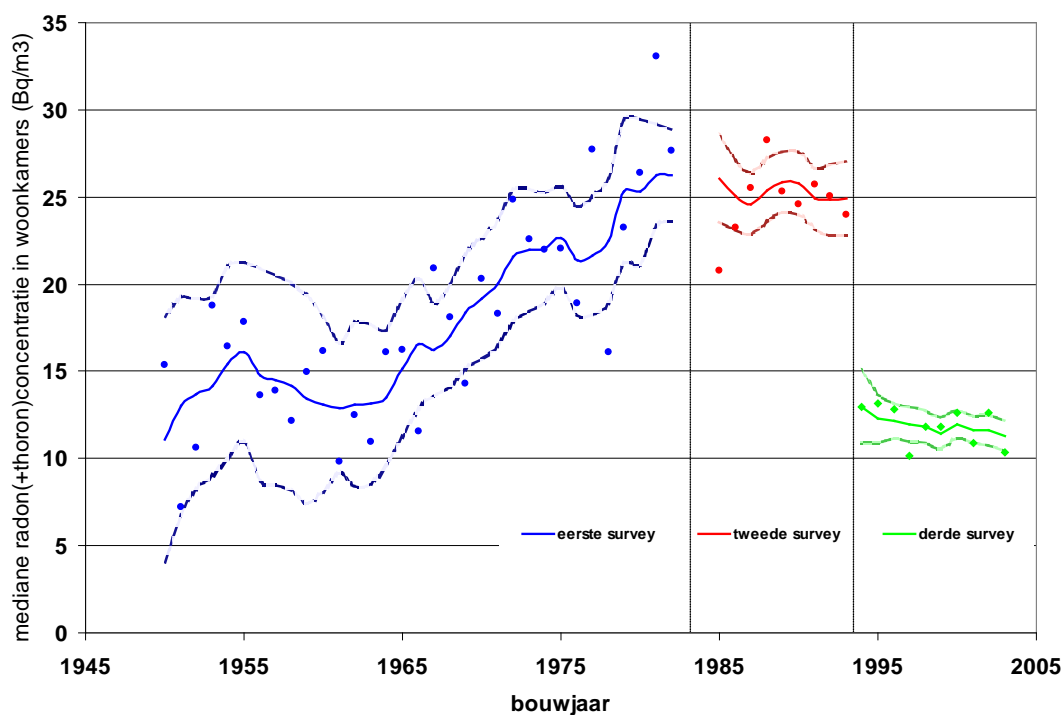
Bij een landelijk onderzoek naar de stralingsbelasting in nieuwbouwwoningen, gebouwd tussen 1994 en 2003, bleek dat de concentratie van het radioactieve edelgas radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) binnenshuis was gehalveerd ten opzichte van vorige surveys. Uit nader onderzoek volgde een mogelijke beïnvloeding van de in eerdere surveys toegepaste passieve radondetectoren door thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ), een ander isotoop van het element radon.

Uit het onderzoek dat hier wordt gerapporteerd, volgt dat de in eerdere surveys toegepaste passieve radondetectoren naast radon inderdaad ook thoron hebben meegemeten. De radonconcentratie in nieuwbouwwoningen is daarmee aanzienlijk lager dan in die eerdere surveys gemeten is. De in de vorige surveys gemeten toename is vermoedelijk in ieder geval deels veroorzaakt door hogere concentraties thoron. Gezien enerzijds de plaatsing van de detectoren en anderzijds de hoogte van de thoronconcentratie ter hoogte van de detectoren lijkt er daarbij sprake te zijn van een of meer bouwmaterialen met aanzienlijk verhoogde thoronexhalatie. Omdat gangbare bouwmaterialen zoals beton, kalkzandsteen en baksteen over het algemeen geen hoge concentraties radionucliden bevatten, is de aandacht daarbij uitgegaan naar (minder bemeten) afwerkmaterialen, zoals gips en mogelijk leem of spachtelputz. In een aantal onderzochte monsters stucgips zijn sterk verhoogde concentraties radioactiviteit gemeten en is ook een sterk verhoogde thoronexhalatie gemeten die circa dertig maal zo groot is als de exhalatie uit beton. Indien in een woning sprake is van een dergelijke verhoogde thoronexhalatie, kan de stralingsbelasting zelfs in belangrijkere mate door de thoron worden bepaald dan door de radon.

# 1 Inleiding

## 1.1 Probleemstelling

In nieuwbouwwoningen is tijdens twee eerdere surveys de radonconcentratie in woningen gemeten. In de periode van begin jaren zeventig tot begin jaren negentig van de vorige eeuw volgde uit die onderzoeken een toename van gemiddeld  $20 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  (in 1970) tot gemiddeld  $30 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  (in 1990) [1, 2]. Naar aanleiding van een recente derde survey (VERA) in woningen gebouwd in de periode 1994-2003 is gebleken [3] dat de gemiddelde radonconcentratie in die woningen slechts ongeveer  $13 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  bedraagt (zie Figuur 1). Uit verschillende aanwijzingen ontstond het beeld dat een belangrijk deel van de eerder aan radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) toegewezen concentratie in werkelijkheid werd veroorzaakt door thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ). Wat nu de werkelijke concentraties van deze isotopen van radon zijn geweest, is onduidelijk. Overigens dragen beide isotopen van radon bij aan de stralingsbelasting en aan het risico op longkanker.



Figuur 1 Ontwikkeling van radon(+thoron-)concentratie in woonkamers tijdens de eerste en tweede survey in 1984 en 1994 en de radonconcentratie tijdens de derde survey in 2006. Getoond is het vijfjarig lopende gemiddelde +/- een standaarddeviatie.

## 1.2 Doelstelling

Naar aanleiding van de resultaten van de VERA-survey was een nader onderzoek naar vooral de onderbouwing van de bijdrage van thoron gewenst.

Dit rapport probeert een overzicht te geven van de kennis betreffende thoron. Het gaat dan vooral om de volgende onderwerpen:

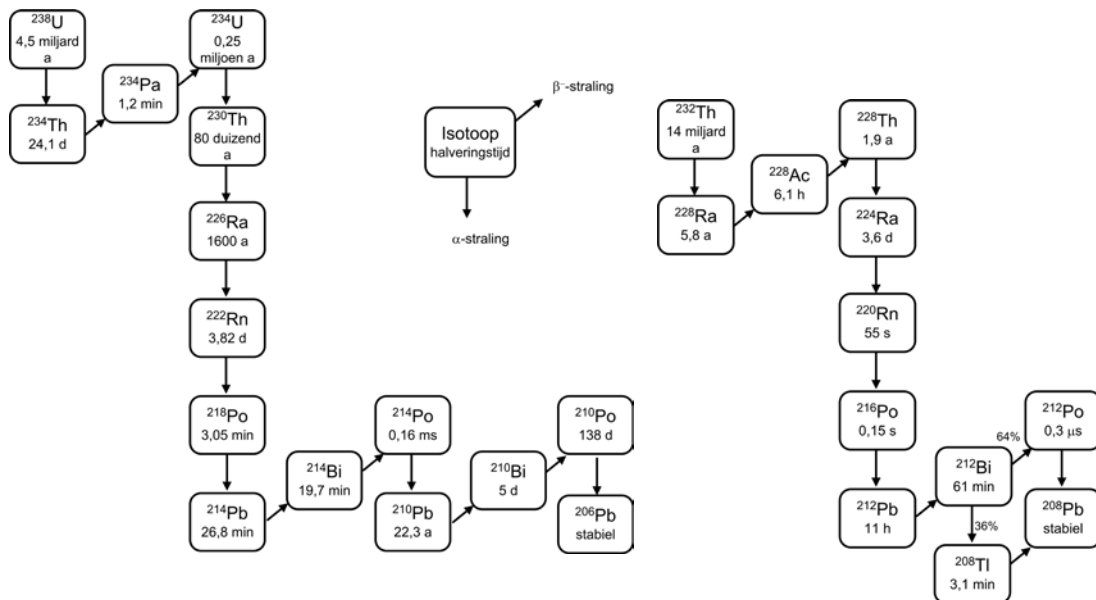
- radon versus thoron: korte beschrijving van deze twee isotopen van het element radon, hun voorkomen in het binnenmilieu en de specifieke verschillen en effecten op de stralingsbelasting;
- de onderzochte oorzaken van de meetverschillen tussen de eerdere surveys en de laatste (VERA) en de feitelijke oorzaak;
- literatuuronderzoek betreffende thoronmetingen in surveys in het buitenland;
- nieuw onderzoek aan thoron en de controle van eerder toegepaste detectoren;
- consequenties van de thoronmeetresultaten voor de beschouwing van eerdere radonsurveys.

Uiteindelijk sluit het rapport af met enkele adviezen voor toekomstig onderzoek in gecombineerde radon/thoron-surveys.

## 2 Radon versus thoron

### 2.1 Halveringstijd en vervalproducten

Thoron en radon zijn beide isotopen van het element radon. Waar we de isotoop  $^{222}\text{Rn}$  altijd simpelweg aanduiden met radon, wordt de isotoop  $^{220}\text{Rn}$  thoron genoemd. Thoron heeft een veel kortere halveringstijd (ongeveer 56 seconden) dan radon (ongeveer 3,8 dagen). Radon en thoron zijn afkomstig uit respectievelijk de uranium- ( $^{238}\text{U}$ ) en thorium- ( $^{232}\text{Th}$ ) vervalreeksen (zie Figuur 2). Omdat radionucliden van deze reeksen voorkomen in de bodem en dus in veel (bouw)materialen afkomstig uit die bodem (beton, baksteen, kalkzandsteen et cetera), ontstaan radon en thoron ook in dergelijke bouwmaterialen. Het element radon is een edelgas en kan daarom ontwijken uit de bodem of het bouw materiaal. Beide isotopen zijn chemisch gelijk en dragen ook allebei bij aan de stralingsbelasting.



Figuur 2 De radioactieve vervalreeksen van  $^{238}\text{U}$  en  $^{232}\text{Th}$  waarin respectievelijk  $^{222}\text{Rn}$  (radon) en  $^{220}\text{Rn}$  (thoron) voorkomen.

Voor de blootstelling van de mens aan radon en thoron zijn de kortlevende vervalproducten van deze isotopen bepalend. Deze ook weer radioactieve producten zijn namelijk zware metalen. Deze kunnen bij inademing in de longen achterblijven en daar hun straling afgeven, wat uiteindelijk tot longkanker kan leiden. Het isotoop radon kan in het binnenmilieu vanwege zijn relatief lange halveringstijd zowel uit de bodem als uit bouwmaterialen afkomstig zijn. Voor thoron zullen dit voornamelijk de bouwmaterialen zijn.

Als alleen halveringstijden in ogenschouw worden genomen zouden de kortlevende vervalproducten van  $^{222}\text{Rn}$  en  $^{220}\text{Rn}$  in de lucht altijd in radioactief evenwicht moeten zijn met hun desbetreffende moedernucliden. Omdat die vervalproducten echter chemisch actief zijn, hechten ze zich gemakkelijk aan stofdeeltjes. Dan vindt er door *plate-out* (het hechten aan wanden en voorwerpen) een daling plaats van de vervalproductconcentraties in lucht en is het evenwicht verstoord. Afhankelijk van onder andere stofconcentratie en ventilatie kan een radonactiviteit in lucht dus verschillende concentraties aan vervalproducten in lucht veroorzaken. Omdat de stralingsbelasting door radon bij de mens vooral door

deze vervalproducten wordt veroorzaakt, is een omrekening naar de zogenaamde evenwichtsequivalente concentratie (EEC) gewenst. Deze EEC is gedefinieerd als die concentratie van  $^{222}\text{Rn}$  of  $^{220}\text{Rn}$  in evenwicht met de kortlevende vervalproducten die dezelfde potentiële  $\alpha$ -energieconcentratie van de vervalproducten vertegenwoordigt als het niet-evenwicht mengsel. Het is namelijk de in weefsel gedissipeerde  $\alpha$ -energie die de dosis levert. Hierbij is de potentiële  $\alpha$ -energie van een vervalproduct de totale  $\alpha$ -energie die wordt uitgezonden tot de nuclide vervallen is tot  $^{208}\text{Pb}$  (bij  $^{220}\text{Rn}$ ) dan wel  $^{210}\text{Pb}$  (bij  $^{222}\text{Rn}$ ). De evenwichtsfactor  $f$  is gedefinieerd als de verhouding van de EEC en de werkelijke concentratie van de moedernuclide:

$$f_{\text{Rn}-222} = \text{EEC}_{\text{Rn}-222} \cdot [\text{Rn} - 222]^{-1} \quad 2-1$$

$$f_{\text{Rn}-220} = \text{EEC}_{\text{Rn}-220} \cdot [\text{Rn} - 220]^{-1} \quad 2-2$$

Omrekening van de radonconcentraties naar evenwichtsequivalente concentraties komt dus neer op het berekenen/schatten van de factor  $f$ . Zie voor de berekening bijvoorbeeld [4]. Wanneer de potentiële  $\alpha$ -energieën per isotoop in gewichtsfactoren worden toegepast, kan de evenwichtskoncentratie ook uitgedrukt worden in de concentraties van de belangrijkste vervalproducten:

$$\text{EEC}_{\text{Rn}-222} \cong 0,105 \cdot [\text{Po} - 218] + 0,514 \cdot [\text{Pb} - 214] + 0,381 \cdot [\text{Bi} - 214] \quad 2-3$$

$$\text{EEC}_{\text{Rn}-220} \cong 0,913 \cdot [\text{Pb} - 212] + 0,087 \cdot [\text{Bi} - 212] \quad 2-4$$

De belangrijkste kortlevende vervalproducten van  $^{222}\text{Rn}$  leven circa een halfuur. In een stabiele situatie ontstaat spoedig een soort evenwicht, ook wel seculier evenwicht genoemd, tussen  $^{222}\text{Rn}$  en deze vervalproducten. Voor het binnenmilieu is een  $f_{\text{Rn}-222}$  vastgesteld van ongeveer 0,4.

Voor thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) is het niet goed mogelijk om van een evenwicht te spreken. Gezien de korte halveringstijd zal dit gas voornamelijk worden aangetroffen nabij de bron (bodem, bouw materiaal) en zal de concentratie onder niet-turbulente omstandigheden sterk afnemen als functie van de afstand tot die bron (halvering van de concentratie binnen enkele centimeters). Met name het vervalproduct  $^{212}\text{Pb}$  leeft echter veel langer (circa 10 uur) en kan zich veel homogener door een ruimte verspreiden. Evenwicht tussen  $^{220}\text{Rn}$  en  $^{212}\text{Pb}$  in een woonkamer zal dus niet gauw optreden. Dit geeft ook meteen het grote verschil tussen meten van thoron en radon weer: het meten van radon zegt vrij direct iets over de dosis door vervalproducten terwijl bij het meten van thoron nog een extra ‘vertaling’ naar de voor de stralingsbelasting relevante vervalproducten nodig is.

## 2.2 Vrijkomen uit bodem en bouw materiaal

Voordat radon en thoron door de bodem of het bouw materiaal worden geëxhaleerd vindt er een proces plaats dat emanatie heet. Emanatie is het proces van vrijmaking van de radonatomen uit het moedermateriaal. Na emanatie uit het moedermateriaal kan transport van het edelgas in de bodem of het bouw materiaal plaatsvinden via convectie en diffusie.

Bij emanatie is een aantal zaken van belang, zoals vochtgehalte, porositeit en deeltjesgrootte, maar ook de mate waarin het materiaal ‘gesinterd’ is. Radon kan maar moeizaam ontwijken uit gesinterd materiaal. De emanatie van radon in bijvoorbeeld baksteen of vliegglas (toeslagmiddel in beton) is daardoor kleiner dan bij andere bouwmaterialen zoals kalkzandsteen of beton. In de bodem ligt de emanatie in het bereik 0,01 - 0,8 (1 - 80% komt vrij uit het moedermateriaal). Voor bouwmaterialen ligt dit, door het lagere vochtgehalte, veelal iets lager, namelijk in het bereik 0,002 - 0,2 [5]. Zie voor een nadere beschrijving van dit proces bijvoorbeeld [4].

Van exhalatie spreekt men op het moment dat het edelgas uit de bodem of het bouw materiaal wordt getransporteerd. Belangrijk voor de grootte van de exhalatie uit bodem of bouw materiaal zijn: radiumconcentratie (hieruit ontstaat radon/thoron via radioactief verval), temperatuur, drukverschillen, permeabiliteit, vochtgehalte, porositeit en natuurlijk de emanatie.

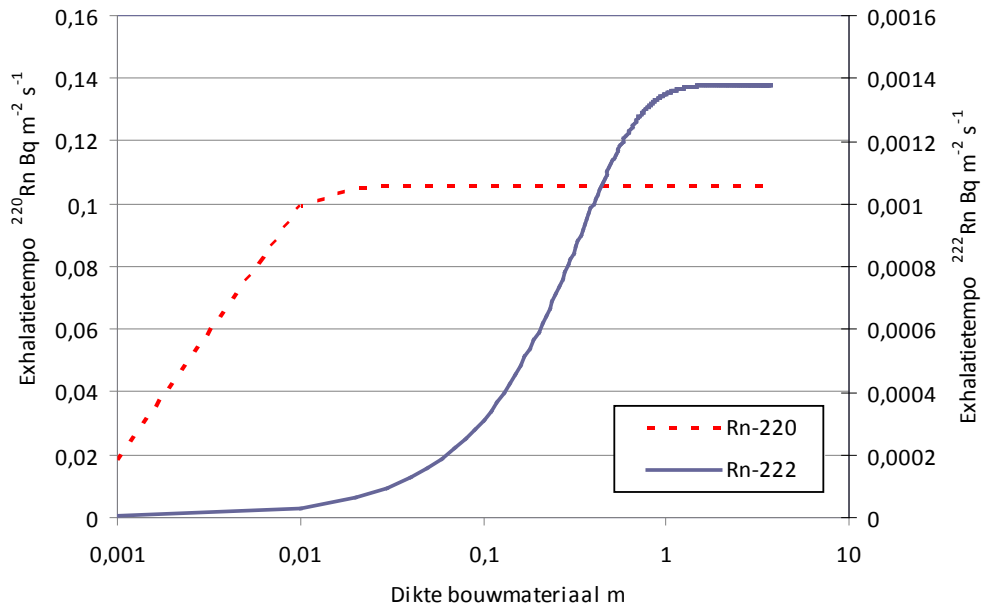
Als drukverschillen geen grote rol spelen, zal het element radon, dus zowel  $^{222}\text{Rn}$  als  $^{220}\text{Rn}$  via diffusie uit het materiaal komen. Voor bouw materiaal in de vorm van een muur kan deze exhalatie ( $E$ ) als volgt worden geschreven [5, 6]:

$$E_{\text{bouw materiaal}} = \lambda_{\text{Rn}} \cdot \eta \cdot C_{\text{Ra, bouw m}} \cdot \rho_{\text{bouw m}} \cdot \sqrt{\frac{D_{\text{Rn}}}{\lambda_{\text{Rn}}}} \cdot \tanh\left(\frac{d_{\text{bouw m}}}{2} \sqrt{\frac{\lambda_{\text{Rn}}}{D_{\text{Rn}}}}\right) \quad 2-5$$

Hierbij zij:

- $\eta$  de emanatiefactor,
- $\lambda_{\text{Rn}}$  en  $D_{\text{Rn}}$  de vervalconstante en diffusiecoëfficiënt van radon of thoron in het bouw materiaal,
- $\rho$  en  $d$  de dichtheid en dikte van het bouw materiaal en
- $C_{\text{Ra, bouw m}}$  de concentratie van het betreffende moedernuclide waaruit radon of thoron ontstaat in het bouw materiaal.

Deze exhalatie is voor verschillende diktes van het bouw materiaal weergegeven in Figuur 3. In de figuur is gebruik gemaakt van een aantal aannamen voor onder andere de dichtheid van het bouw materiaal en de activiteit van het aanwezige moedernuclide. Belangrijk is om op te merken dat voor radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) de exhalatie toeneemt met de dikte van een muur. Pas als een muur meer dan een meter dik is zal de exhalatie niet verder toenemen. Voor thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) wordt dit punt al bereikt bij circa 1 centimeter. Verder ligt de exhalatie van thoron veelal meer dan een factor 100 hoger dan die van radon (zie vergelijking 2-5). Dit komt vooral door het verschil in halveringstijd.



Figuur 3 Exhalatie (Bq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>) van radon en thoron uit een bouw materiaal bij verschillende diktes

Voor de exhalatie vanuit de bodem wordt door UNSCEAR een bereik gegeven van 0,0002 - 0,07 Bq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> voor <sup>222</sup>Rn en 0,015 - 5,3 Bq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> voor <sup>220</sup>Rn [5]. Voor de exhalatie vanuit bouwmaterialen worden door Folkerts et al. [7] bereiken opgegeven van 0,00005 - 0,005 Bq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> voor <sup>222</sup>Rn en 0,01 - 0,1 Bq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> voor <sup>220</sup>Rn. Deze waarden zijn veelal lager dan bij de bodem, vanwege de al eerder genoemde lagere emanatie in het over het algemeen drogere bouw materiaal.

### 2.3 Algemene gegevens over blootstelling aan thoron

Tot nog zeer recent werd ervan uitgegaan dat de bijdrage van thoron aan de totale blootstelling aan radonisotopen beperkt was [8]. Op basis van het overwegend sedimentaire karakter van de bodem in Nederland worden geen hoge radonconcentraties verwacht. Hier zijn dan ook de bouwmaterialen belangrijker dan de bodem. Thoron dat in een woonruimte hoofdzakelijk vanuit de bouwmaterialen afkomstig is, zou daarom hier wel een rol kunnen spelen. In de meeste ons omringende landen heeft de bodem een veel grotere invloed dan de bouwmaterialen en zal vanwege de veel langere halveringstijd vooral <sup>222</sup>Rn een rol spelen. Echter, ook internationaal wordt de laatste jaren meer onderzoek gedaan naar thoron. Dit komt deels omdat zich mogelijk toch situaties voordoen waarbij thoron een rol van betekenis speelt.

De karakteristieke gemiddelde evenwichtsequivalente concentratie (EEC) van thoron in een woning bedraagt circa 0,5 Bq.m<sup>-3</sup> [9] (en overgenomen in [8]). Hierbij dient er dan geen sprake te zijn van specifieke thoriumhoudende bodems of bouwmaterialen. In die gevallen kan de concentratie aanzienlijk hoger uit komen.

De dosis die door thoron(veralproducten) wordt veroorzaakt, bedraagt naar de huidige inzichten 40 nSv per Bq.h.m<sup>-3</sup> [8]. De beschouwing van deze dosisconversiecoëfficiënt (DCC) dateert echter al weer van circa 30 jaar geleden. Uit meer recente inzichten lijkt een bijstelling naar boven met een factor 2 waarschijnlijk [10]. De ICRP heeft voor radon (<sup>222</sup>Rn) al aangekondigd dat de DCC naar boven bijgesteld gaat worden.

Gecombineerd levert dat bij een verblijf binnenshuis gedurende 90% van de tijd dus een gemiddelde of karakteristieke jaardosis door blootstelling aan thoron in het binnenmilieu op van 0,16 mSv (of meer als de DCC verhoogd wordt). De dosisbijdrage door blootstelling aan radon (<sup>222</sup>Rn) in het binnenmilieu is veelal aanzienlijk hoger. UNSCEAR geeft een schatting van de gemiddelde dosis door blootstelling aan natuurlijke bronnen van radon van 1,15 mSv per jaar [8]. Wél wordt in de laatste editie van het UNSCEAR rapport benadrukt dat de bijdrage van thoron aan de dosis zeer variabel is en dat de bijdrage groter kan zijn dan voorheen gedacht.

## 3 Mogelijke oorzaken voor afwijkende meetresultaten

Het eerder geconstateerde verschil [3] tussen de radonconcentratie, zoals die in de laatste survey is gemeten, en de resultaten van eerdere surveys (zie ook 5.1), vraagt om een verklaring. In het ‘Voorlopige resultaten rapport’ [3] kon daarover nog geen volledig uitsluitel gegeven worden.

### 3.1 Vier mogelijke oorzaken

De mogelijke oorzaken van de vastgestelde meetverschillen zijn in grofweg vier verschillende categorieën in te delen.

#### *Andere detector*

Een verklaring zou kunnen zijn dat het verschil in detector een rol speelt. In de eerdere surveys is gebruik gemaakt van radondetectoren van Forschungszentrum Karlsruhe (FzK)<sup>\*1)</sup> of vergelijkbare typen. Het centrum in Karlsruhe bevond zich bij de opzet van de VERA-studie in een (onzekere) privatiseringsronde. Grote aantallen detectoren afnemen was geen goede optie. Voor de continuïteit en vergelijkbaarheid van de meetresultaten is echter wel een serie detectoren van dat type meegenomen in een vergelijking met de in de VERA toegepaste detectoren van het Zweedse Gammadata. In deze vergelijking, zowel buiten (onder een overkapping) als binnen (in het midden van een kelder) is van beide type detectoren een aantal naast elkaar gehangen. Er blijken geen verschillen te zijn in de gedetecteerde concentraties radon tussen beide typen detectoren [3]. De toepassing van een andere detector lijkt dus wat het meten van radon betreft niet de verklaring.

#### *Trendbreuk in radonconcentratie*

Een andere mogelijkheid is een trendbreuk in de radonconcentratie. Om één of andere reden zou de radonconcentratie in woningen gebouwd tot en met 1993 kunnen verschillen met die in woningen van daarna. Dit verschil in concentratie zou echter alleen kunnen optreden als er plotseling een andere bouwwijze en/of bouwmateriaal zou zijn toegepast of als de ventilatie van nieuwbouw plotseling verdubbeld zou zijn. Meestal zijn aanpassingen aan bouwwijze en toegepaste bouwmaterialen echter niet zo abrupt. Uit het VERA-onderzoek is ook niet gebleken dat het ventilatievoud sterk zou zijn toegenomen [11]. Deze verklaring lijkt dan ook niet waarschijnlijk.

#### *Meetfouten bij Gammadata-detector*

Er zouden analyseproblemen kunnen zijn opgetreden bij de detectoren van Gammadata, zoals die zijn toegepast in de VERA-survey. Om dit nader te onderzoeken is ter plaatse (bij Gammadata in Zweden) onderzoek gedaan naar de diverse procedures. Het bleek echter dat Gammadata (ISO 17025 geaccrediteerd) alles goed op orde heeft. De vierde mogelijkheid werd echter ook door Gammadata gesuggereerd:

#### *Meemeten van thoron door FzK-detector*

Als de radondetector niet voldoende ‘dicht’ is (dat wil zeggen: thoron heeft genoeg tijd om binnen te dringen voordat het vervallen is), dan kan naast radon (<sup>222</sup>Rn) ook thoron (<sup>220</sup>Rn) in de detector binnendringen. Gezien de halveringstijd van ongeveer 56 seconden voor thoron is het voor het buitensluiten van thoron voldoende als de diffusietijd voor het binnendringen in de detector meer dan 10 minuten bedraagt. Bij de detector van Gammadata bedraagt deze binnendringtijd circa 45 minuten

---

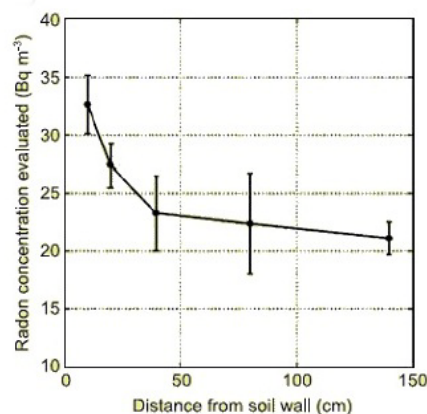
<sup>\*1)</sup> Sinds 1 oktober 2009 bestaat het FzK niet meer. Het FzK is per die datum samengegaan met de Universiteit van Karlsruhe en vormt nu het Karlsruhe Institute of Technology (KIT). De naamgeving FzK wordt hier toch verder gehandhaafd, omdat verwijzing veelal naar het FzK-type detector plaatsvindt.

en is thoron niet meer van belang. Uit metingen nabij een muur was dit ook al vastgesteld [3]. De detector van FzK was alleen vergeleken met die van Gammadata op meer dan een halve meter van een muur (zie eerste mogelijkheid *Andere detector*). Omdat de thoronconcentratie daar vaak al zeer laag is, was er op die afstand een goede overeenstemming tussen beide typen detector. Dit lijkt dan ook een waarschijnlijke verklaring voor het gevonden meetverschil. Nader onderzoek heeft zich dan ook gericht op deze mogelijkheid van thoroninvloed op de detector.

### 3.2 Onderbouwing thoroninvloed radondetectoren

De plotselinge trendbreuk die is te zien in de grafiek die de radonconcentratie per bouwjaar laat zien, geeft vermoedelijk dus niet een werkelijke halvering van de radonconcentratie weer, maar het verschil tussen een meting van radon+invloed thoron tot 1994 en radon vanaf 1994.

In Figuur 4 [12] is te zien hoe de radonconcentratie voor detectoren van het type KfK zou afhangen van de afstand tot de muur, terwijl in [3] is vastgesteld dat dit niet het geval is geweest voor de Gammadata-detectoren. Gezien het verschil in halveringstijd wordt voor radon geen en voor thoron wél afhankelijkheid van de concentratie van de afstand tot de muur verwacht.



Figuur 4 Detector repons van een KfK (vroegere naam van FzK) detector nabij een muur, iets afwijkend van de huidige FzK-detector [12]

Uit nader literatuuronderzoek is gebleken dat sommige radondetectoren ook gevoelig zijn voor thoron. De detector meet dan niet de concentratie van radon, maar van radon en (een deel van het) thoron [13, 14, 15, 16]. Omdat de kalibratie van dergelijke detectoren voor radon en thoron verschillend is, levert dit geen kwantitatief juiste informatie op over radon- en/of thoronconcentratie.

Het pas relatief recent beschikbaar komen van kennis over de invloed van thoron op radondetectoren wordt veroorzaakt door een deel van het kwaliteitssysteem: de vergelijkingen tussen verschillende radondetectoren, ook wel intercomparisons genoemd. Het is een goede zaak dat verschillende radondetectoren geregeld meedraaien in een internationale intercomparison. Dat komt de kwaliteit van de metingen zeker ten goede. De detectoren worden echter alleen getest bij verschillende radonconcentraties in een zogenaamde radonkalibratiekamer, waar de thoronconcentratie 0 is. Daar blijken de verschillende detectortypen vervolgens goed te presteren, maar onder werkelijke praktijkomstandigheden worden ze ook blootgesteld aan thoron.

Gebleken is dat surveys, na het meten van radon en thoron apart, geheel herzien moesten worden [17, 18, 19]. Een belangrijk probleem bij het meten van thoron is de grote variabiliteit binnen een ruimte. Vaak neemt de concentratie sterk af als functie van de afstand tot muren en plafonds [12, 20]. Soms van duizenden  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  vlak aan de wand tot bijna 0 in het midden van een kamer. Afhankelijk van de aanwezigheid van sterke turbulentie kan de concentratie aan de muur omlaag en in het midden van een kamer omhoog gaan.

Uiteindelijk blijkt uit een nader onderzoek van de Karlsruhe-detectoren, dat ongeveer gelijktijdig met de VERA-survey plaatsvond, dat de FzK-detectoren inderdaad ook thoron hebben meegemeten [21]. Volgens FzK wordt iedere  $\text{Bq}/\text{m}^3$  thoron daarbij valselijk aangezien voor  $0,54 \text{ Bq}/\text{m}^3$  radon. In combinatie met het aanzienlijke verschil tussen de gerapporteerde radonconcentraties uit de tweede survey en de gemeten radonconcentratie in de VERA-survey, moet worden vastgesteld dat er aanzienlijke thoronconcentraties aanwezig zijn geweest op de locaties van de FzK-detectoren. Dit zou het verschil tussen de waargenomen radonconcentraties aan weerszijden van de trendbreuk tussen de tweede en derde survey kunnen verklaren.

## 4 Nader onderzoek naar thoron

### 4.1 Literatuuronderzoek

#### 4.1.1 Thoronmetingen

Het meten van thoron heeft tot voor kort een relatief lage prioriteit gehad. Veelal bleven surveys beperkt tot het meten van het isotoop radon ( $^{222}\text{Rn}$ ). De twee belangrijkste redenen hiervoor zijn, zoals ook genoemd door Steinhäusler [22]:

1. Een geschikte goedkope passieve meetmethode voor thoron voor toepassing in grootschalige surveys was niet beschikbaar.
2. Gebaseerd op de weinige metingen die er al wel waren, is veelal geconcludeerd dat de bijdrage van  $^{220}\text{Rn}$  aan de dosis door het element radon gering was, vergeleken met die van  $^{222}\text{Rn}$ .

Een belangrijke extra verklaring is het al genoemde type van internationale intercomparisons die alleen gebruikmaken van radonconcentraties, waardoor invloeden door thoron niet direct zichtbaar worden.

Pas in de negentiger jaren van de vorige eeuw werden situaties en omstandigheden bekend waaronder thoron mogelijk toch van belang zou kunnen zijn. Dan moet gedacht worden aan specifieke werkzaamheden, zoals bewerkingen aan minerale zanden, maar ook de toepassingen van specifieke bouwmaterialen in woningen. Een voorbeeld is het leem dat in Japan wordt toegepast als afwerking van wanden. Deze blijkt verantwoordelijk voor aanzienlijke thoronexhalatie [23, 24]. Ook in Europa (Italië) blijkt op sommige plaatsen bouw materiaal te zijn toegepast dat tot aanzienlijk verhoogde thoronconcentraties leidt [25, 26]. Naast bouw materiaal blijkt in sommige gevallen toch ook de bodem een rol te kunnen spelen bij de thoronconcentratie in het binnenmilieu [27, 28]. Hiervan zijn ook voorbeelden in ondergrondse werkruimten en woningen en spoorwegtunnels waar hoge concentraties zijn gemeten en de dosis door thoron veel hoger (soms tientallen  $\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ ) is dan die door radon [29].

Sinds enige tijd zijn er nu ook verschillende mogelijkheden om thoron te meten, zowel dynamisch (bijvoorbeeld AlphaGuard en RAD7) als passief met zogenaamde CR-39-detectoren [30].

Recent zijn kalibratiefaciliteiten voor thoron- en radondetectoren beschikbaar gekomen in Berlijn bij de PTB en in Chiba, Japan bij het NIRS [31, 32].

In diverse landen (Groot-Brittannië, Canada, Zweden) is recent echter ook vastgesteld dat thoron in die landen voor zover als nu bekend slechts in beperkte mate bijdraagt aan de dosis door radonisotopen [33, 34, 35]. Het is dus niet vanzelfsprekend zo dat in landen waar hoge radonconcentraties voorkomen ook hoge thoronconcentraties een rol spelen. In Nederland leek zowel van specifieke bodems als van specifieke bouwmaterialen met hoge thoriumconcentraties geen sprake te zijn. De nu opdoemende verschillen in meetresultaten tussen surveys stellen ons echter opnieuw voor de vraag of dat ook werkelijk zo is. Omdat de verschillen overal in Nederland zijn aangetroffen waar de VERA-survey heeft plaatsgevonden, lijkt het niet waarschijnlijk dat dit is toe te schrijven aan een specifieke bodem. Een meer algemeen toegepast bouw materiaal ligt dan meer voor de hand. Een mogelijkheid is de toepassing van afwerkmaterialen, zoals stuc in de vorm van (fosfo)gips of leem (zeer recent weer in opkomst) of spachtelputz (op basis van fijne deeltjes marmer). Aan veel van dergelijke materialen zijn nog geen metingen gedaan. In 4.2.2.2 is een eerste onderzoek aan een gestuukte muur gerapporteerd.

Uit onderzoek blijkt dat in Nederland in ieder geval tot het jaar 2000 in een aantal belangrijke in de handel verkrijgbare soorten stucgips aanzienlijk verhoogde concentraties thorium aanwezig waren (tien tot twintig keer zo hoog als in beton) [36]. Hoe lang en in welke omvang deze soorten zijn toegepast, is vooralsnog onduidelijk.

#### 4.1.2 Modellen

Toepassing van een passieve meetmethode voor het meten van thoron in een survey heeft de voorkeur. Het is relatief goedkoop en robuust. In belangrijkere mate dan bij radon is, zoals al eerder aangegeven, de verhouding tussen thoron en de kortlevende vervalproducten niet constant. In een woonkamer vervalt het thoron nabij de wanden, plafond en vloer en het belangrijkste vervalproduct  $^{212}\text{Pb}$  bevindt zich juist relatief homogeen verdeeld door die kamer. De dosis door radon en thoron wordt echter bepaald door de vervalproducten. Voor radon is deze eenvoudig af te leiden, want evenredig met de radonconcentratie. Voor thoron zou óf de vervalproductconcentratie gemeten moeten worden, maar dat is duur en omslachtig, óf er is een extra ‘vertaling’ nodig van thoron naar vervalproducten in de vorm van een model.

Voor de modellering van thoron en vervalproducten zijn in de loop der tijd diverse methoden toegepast. Voorbeelden zijn: compartimentmodellen [37], 1-en 2-dimensionale analytische beschrijvingen [38, 39] en een relatief nieuwe is de zogenaamde CFD (Computational Fluid Dynamics) benadering [40]. Deze laatste is ook recent nog toegepast door NRG voor Nederland [41]. Verder zijn er in de praktijk ontwikkelde vuistregels [42].

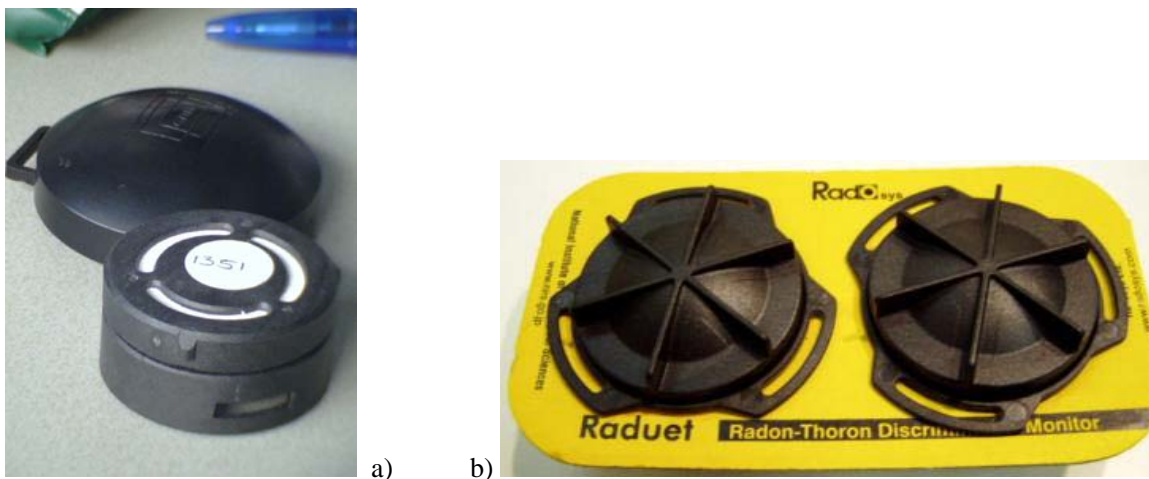
Als onderzoek specifiek gericht is op exhalatie van radon en thoron uit bouwmaterialen, dus dicht bij het bouw materiaal, dan zijn 1- en 2-dimensionale benaderingen nog goed te gebruiken. Wanneer het om de samenhang gaat van ventilatie, warmtestromen, hechting aan aerosolen of grotere deeltjes en depositie op wanden of andere oppervlakken, dan is een meer specialistische benadering, zoals de CFD-methode, gewenst. Wél blijven deze modellen altijd afhankelijk van invoerparameters die voor de complexere modellen vaak niet in het gewenste detail beschikbaar zijn. Ook is het van belang om, welk model dan ook gebruikt wordt, de resultaten waar mogelijk te valideren met meetgegevens.

## 4.2 Meting van thoron in onderzoeksofstelling

### 4.2.1 Meetmethoden en apparatuur

Voor een nader onderzoek naar de bijdrage van thoron aan de dosis in het binnenmilieu is, naast de detectoren van FzK en Gammadata, een nieuwe detector gebruikt, de Raduet [30] (zie Figuur 5). Met deze ‘nieuwe’ detector kan tegelijkertijd radon en thoron worden gemeten. In feite meet de ene detector alleen radon en de andere radon en thoron en is er sprake van een verschilmeting voor de thoronbijdrage. Om vast te stellen hoe groot het effect is van radon en thoron op de meting door de verschillende detectoren is een opstelling gecreëerd (zie Figuur 6). Op verschillende afstanden van een muur kunnen daarin detectoren worden opgehangen. De hierbij gebruikte afstanden zijn ‘0’ cm, 5 cm, 10 cm, 30 cm en 50 cm. De ‘0’-afstand is de situatie waarbij de detector tegen de muur aanhangt. Voor de FzK-detectoren bedroeg deze afstand circa 0 cm, want deze hingen met de filterzijde vlak voor de muur. Voor de Gammadata detectoren was deze ‘0’ gemiddeld circa 1 cm van de muur. Deze afstand is minder gevoelig, omdat deze detectoren geen thoron meten. De ingang van de Radosys-detectoren (de Raduets) bevond zich op ongeveer 3 cm van de muur in de ‘0’-afstand. Deze detectoren hebben de

ingang voor de thoronmetingen namelijk aan de zijkant (zie Figuur 7), waardoor de afstand tot de muur iets groter is.



Figuur 5 Detectoren voor a) radon (vooraan FzK, achteraan Gammadata) en b) radon en thoron (Radosys)



Figuur 6 Deelweergaven van de opstelling van detectoren nabij een betonnen muur; detectoren zijn geplaatst op de afstanden '0', 5, 10, 30 en 50 cm van de muur



Figuur 7 Raduets in zijaanzicht; de pijl geeft één van de zes ingangen voor het meten van thoron

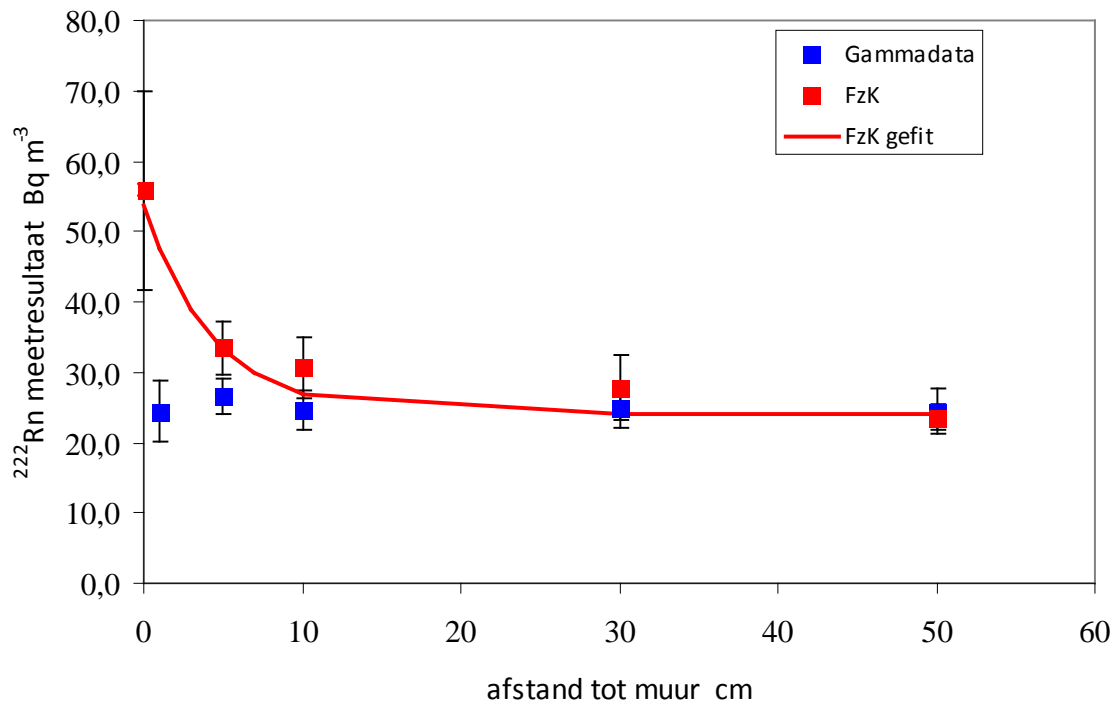
Alle toegepaste detectoren maken gebruik van de zogenaamde alpha track-methode. Zie voor een nadere beschrijving van deze methode bijvoorbeeld [43]. De  $\alpha$ -straling van radon, thoron en hun vervalproducten leveren sporen op filmmateriaal (CR39/PADC) dat zich in de detector bevindt. Het aantal sporen is een maat voor de concentratie.

De detectoren (tien stuks per type en per afstand) hebben ongeveer negen maanden op dezelfde locatie gehangen. Deze locatie is een geventileerde, maar weinig bezochte ruimte. Alle wanden, het plafond en de vloer zijn van beton. De detectoren hebben echter alle dicht bij één van de wanden gehangen dan bij alle andere wanden. Beïnvloeding van de meting door andere wanden is dan ook beperkt.

## 4.2.2 Meetresultaten

### 4.2.2.1 Metingen nabij een betonnen muur

Om de eerder beschreven theorie, dat de radondetectoren van FzK ook thoron hebben gemeten, te toetsen, zijn de in 4.2.1 beschreven metingen gestart.



Figuur 8 Meetresultaten van de radonconcentratie uitgevoerd met detectoren van zowel het FzK- als het Gammadata-type op verschillende afstanden van een betonnen muur.

Zoals in Figuur 8 is te zien, neemt de door de FzK-detectoren gemeten ‘radon’-concentratie toe als ze zich dichterbij het bouw materiaal (in dit geval een betonnen muur) bevinden. Voor de concentratie van radon maakt de afstand niet uit (Gammadata-detector).

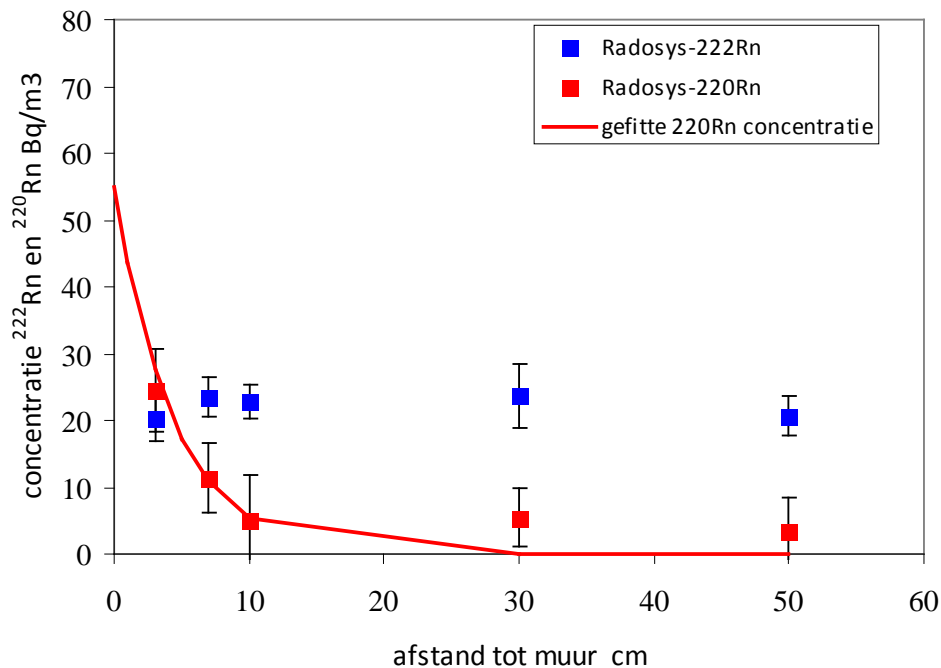
Voor de concentratie van thoron  $C_{Rn220}$  ( $Bq.m^{-3}$ ) spelen twee zaken een rol: de exhalatiesnelheid  $E_{Rn220}$  ( $Bq.m^{-2}.s^{-1}$ ) vanuit de wand en de (turbulente) diffusie  $D$  ( $m^2.s^{-1}$ ) in de lucht. Door Katase et al. is die als volgt uit de diffusievergelijking afgeleid [38]:

$$C_{Rn220}(z) = \frac{E_{Rn220}}{\sqrt{\lambda_{Rn220} \cdot D}} \cdot \exp\left(-\sqrt{\frac{\lambda_{Rn220}}{D}} z\right) \quad 4-1$$

waarbij  $\lambda_{Rn220}$  ( $s^{-1}$ ) de vervalconstante van thoron is en  $z$  (m) de afstand tot de wand.

De gefitte kromme voor FzK-data in Figuur 8 gaat uit van bovengenoemde vergelijking, in feite een exponentieel verval met als halveringslengte 3 cm, ofwel de diffusielengte van thoron in lucht. Dit lijkt redelijk de gemeten waarden te verklaren.

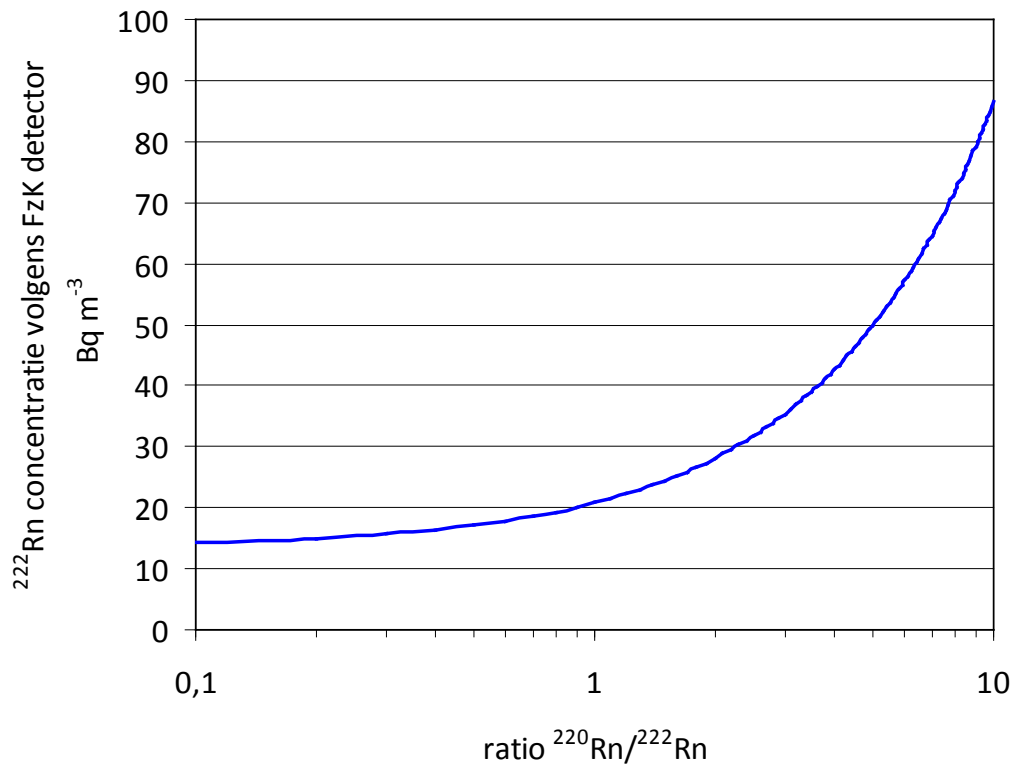
Ook voor de  $^{222}Rn$ -detector van Radosys maakt de afstand tot de muur niet uit (zie Figuur 9). De gemiddelde radonconcentratie volgens beide typen detector (vijf verschillende afstanden) komt goed overeen ( $25 \pm 3 Bq.m^{-3}$  en  $22,5 \pm 3 Bq.m^{-3}$  voor respectievelijk Gammadata en Radosys). De thorondetector van Radosys vertoont eenzelfde beeld als de FzK-detector, maar dan zonder de radonbijdrage (concentratie gaat naar 0 voor grotere afstand tot de muur).



Figuur 9 Meetresultaten van de radonconcentratie uitgevoerd met detectoren van Radosys op verschillende afstanden van een betonnen muur.

Het met de thorondetectoren gevonden concentratieprofiel (volgens vergelijking 4-1) komt overeen met een exhalatietempo vanuit het bouw materiaal van ongeveer  $0,03 Bq.m^{-2}.s^{-1}$  (zwaar beton:  $0,01 - 0,107 Bq.m^{-2}.s^{-1}$  volgens [7]) en een turbulente diffusiecoëfficiënt van  $3 \times 10^{-5} m^2.s^{-1}$ . De

detectoren van FzK meten ongeveer de helft van deze thoron, wat goed overeenkomt met de gegevens hierover van FzK zelf (54% van de thoron wordt als radon gezien [21]). Indien detectoren van FzK in de vorige survey binnen een afstand circa 10 cm van de muur hebben gestaan of gehangen, zullen deze dus hogere concentraties hebben gedetecteerd dan alleen door radon te verklaren. Uit de huidige resultaten kunnen we concluderen dat de hogere (gemeten) concentraties uit de eerste en tweede survey in ieder geval deels zijn toe te schrijven aan het meemeten van thoron door de FzK-(radon)detectoren.



Figuur 10 De radonconcentratie zoals gemeten door de FzK-detector als functie van de verhouding van de werkelijke thoron- en radonconcentraties; radonconcentratie is 13,5 Bq.m<sup>-3</sup> in de grafiek

In Figuur 10 is weergegeven hoe de door de FzK-detector gemeten concentratie radon zich gedraagt als functie van de verhouding thoron/radon. Als er geen thoron aanwezig is, geeft de detector de juiste radonconcentratie, hier op 13,5 Bq.m<sup>-3</sup> gesteld (het gemiddelde in de laatste survey). Als de thoronconcentratie circa 30 Bq.m<sup>-3</sup> bedraagt, ruim tweemaal de radonconcentratie, dan is de door de FzK-detector gemeten waarde ook ongeveer 30 Bq.m<sup>-3</sup>. Uit Figuur 9 kan worden afgeleid dat een dergelijke thoronconcentratie op ongeveer 2 cm van de muur (in dit meetvoorbeeld) voorkomt. Dit zou betekenen dat de FzK-detector zo goed als met het filter tegen de muur moet hebben gehangen. Veelal stond de detector echter op of in een kast en eerder 10 - 20 cm van de muur, dan ertegenaan, wat op een verhoogde thoronexhalatie zou duiden.

#### 4.2.2.2 Meting van thoron nabij een gestuukte muur

Gezien de relatieve bekendheid van concentraties van radioactiviteit in de gangbare hoofdbouwmaterialen, zoals beton, kalkzandsteen en baksteen, werd hiervan geen verhoogde thoronexhalatie verwacht (zie ook 4.2.2.1). Bij de exhalatie van thoron is, in tegenstelling tot bij radon, echter alleen de buitenste laag van het aan een woonvertrek grenzende bouw materiaal van belang.

Daarom ligt voor thoron de nadruk op de minder bekende activiteit in bijvoorbeeld afwerkmaterialen zoals stuc. Bij een oriënterend onderzoek werd duidelijk dat stucgips op basis van bijvoorbeeld fosfogips sterk verhoogde thoriumconcentraties [36] bevat en mogelijk ook verhoogde thoronconcentraties in de lucht zou kunnen veroorzaken. Nader onderzoek van dit materiaal werd gestart.

### Metingen

Er zijn drie veelgebruikte groepen gips: natuurgips, rogips (een restproduct uit de ‘ontzwaveling’ van de rookgassen van elektriciteitscentrales), en fosfogips (restproduct uit de productie van fosforzuur en bepaalde kunstmeststoffen). Het laatste heeft een hogere radioactiviteit en mag niet in alle landen gebruikt worden in bouwtoepassingen. Concentraties in dergelijke fosfogips-restproducten liggen veelal [44] op 500 - 1000 Bq.kg<sup>-1</sup>. In België wordt bij Prayon Rupel (nabij Luik) deze gips verwerkt in een gipsconditioneringsinstallatie waarbij het onder andere van een groot deel van de radioactiviteit wordt ontdaan. Het zo geproduceerde gips heeft nog een <sup>226</sup>Ra-concentratie van circa 185 Bq.kg<sup>-1</sup>.

In eerste instantie werden voor het onderzoek monsters stuc genomen van in de detailhandel beschikbaar stuc van een bekend Duits merk. Omdat het onderzoek van De Jong et al.[36] van vóór 2000 dateert, is ook gezocht naar een monster van vóór 2000. In alle genoemde stucmonsters zijn gammaspectrometrisch gehalten van verschillende nucliden bepaald. Ook is in een woning waar stuc van vóór 2000 was toegepast op onder andere een muur de thoronconcentratie gemeten met Raduet-detectoren.

### Meetresultaten

Concentraties van <sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ra en <sup>228</sup>Th (‘ouders’ van <sup>222</sup>Rn en <sup>220</sup>Rn, zie Figuur 2) zijn gammaspectrometrisch bepaald in de diverse gipsmonsters op basis van hun kortlevende vervalproducten (Tabellen 1 en 2).

Tabel 1: Activiteitsconcentraties (Bq.kg<sup>-1</sup>) in drie monsters gips verkregen in de detailhandel (2008)

|                    | Geelband   | Goudband  | Roodband  |
|--------------------|------------|-----------|-----------|
| <sup>226</sup> Ra+ | 17,5 ± 1,8 | 4,4 ± 0,5 | 5,2 ± 0,6 |
| <sup>228</sup> Ra+ | 35 ± 4     | 3,9 ± 0,9 | 4,5 ± 1,0 |
| <sup>228</sup> Th+ | 29 ± 3     | 3,1 ± 0,4 | 3,2 ± 0,4 |

+: met kortlevende vervalproducten

Tabel 2: Activiteitsconcentraties (Bq.kg<sup>-1</sup>) in twee monsters gips verkregen in de detailhandel (<2000)

|                    | Goldband | Fix & Finish |
|--------------------|----------|--------------|
| <sup>226</sup> Ra+ | 240 ± 30 | 180 ± 20     |
| <sup>228</sup> Ra+ | 180 ± 30 | 170 ± 30     |
| <sup>228</sup> Th+ | 180 ± 20 | 153 ± 18     |

+: met kortlevende vervalproducten

Van de Goudband is in het 2008-monster geen hoge radium- of thoriumconcentratie aangetroffen. Wél werden in Geelband circa tien keer hogere concentraties van de modernnucliden van thoron aangetroffen. In het Goldband-(= Goudband)monster van vóór 2000 zijn de modernnucliden van zowel radon als thoron in sterk verhoogde concentraties aanwezig (ruim vijftig keer). De radiumconcentratie komt overeen met die in de door Prayon Rupel uit fosfogips geproduceerde gips. Zeer waarschijnlijk is

dus bij deze Goldband (gezien de concentraties) sprake van fosfogips. In de woning waar deze Goldband op de muur werd aangetroffen, zijn eind 2008 thoronmetingen opgestart. De metingen op ongeveer 3 cm van de muur leverden jaargemiddelde concentraties van  $^{220}\text{Rn}$  op van 640 en  $740 \text{ Bq.m}^{-3}$ , ondanks afwerking van de stuc laag met diverse lagen latex verf.

Deze concentraties komen, afhankelijk van de grootte van de turbulente diffusie, overeen met een concentratie aan de muur (afstand 0 cm) van  $1000 - 2000 \text{ Bq.m}^{-3}$  en een exhalatietempo voor thoron van circa  $1 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Het exhalatietempo van gangbare bouwmaterialen, zoals beton en kalkzandsteen bedraagt  $0,01 - 0,1 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  voor  $^{220}\text{Rn}$  volgens Folkerts *et al.* [7]. Voor de betonmuur (zie 4.2.2.1) werd een exhalatietempo van  $0,03 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  gemeten, oftewel een factor 30 lager.

### **Consequenties voor de stralingsbelasting**

Met het door NRG ontwikkelde CFD-model [41] kan, uitgaande van onder andere de thoronexhalatie, de concentratie van vervalproducten en dus de dosis door thoron gemodelleerd worden. De huidige gerapporteerde thoronexhalatie is het tienvoudige van de door NRG gehanteerde, over alle bouwmaterialen gemiddelde, thoronexhalatie. De volgens het CFD-model resulterende dochterconcentratie zal dan ook ongeveer het tienvoudige zijn en wel circa  $3,3 \text{ Bq.m}^{-3}$  EEC. Deze gemiddelde concentratie komt overeen met een jaardosis van ruim 1 mSv door alleen thoron bij een verblijf binnenshuis van 90% van de tijd (gemiddeld voor Nederland). Hierbij is er dan vanuit gegaan dat alle wanden en het pafond zijn gestuukt. In de gemeten situatie was er sprake van muren die diverse keren gesausd (witgeverfd) waren. Mogelijk heeft dit de thoronexhalatie gereduceerd.

## 5 Consequenties voor meetresultaten in eerdere surveys

### 5.1 Meetresultaten in vorige surveys

#### 5.1.1 Toename radon in jaren zeventig

In Figuur 1 is de ontwikkeling van de radonconcentratie in de tijd afgebeeld. Hier is de vijf jaar lopende gemiddelde waarde van de mediane radon- (en thoron)concentratie afgebeeld. In de eerste survey, uit de jaren tachtig, zijn met FzK-detectoren radonmetingen uitgevoerd in huizen uit verschillende bouwjaren in de tweede helft van de twintigste eeuw (zie Figuur 1). In hierop volgende surveys zijn de metingen uitgevoerd in de sindsdien gebouwde woningen. In de derde survey – de VERA-survey (vanaf 1994) – is overgegaan op andere radondetectoren, wat duidelijk is te zien in de trendbreuk in Figuur 1.

#### 5.1.2 Redenen voor toename (gerapporteerde) radonconcentratie

Zoals al aangegeven, is in de eerste en tweede survey naast radon ook thoron gemeten. Dit roept de vraag op of de stijging sinds de jaren zeventig het gevolg was van toegenomen radonconcentratie, toegenomen thoronconcentratie, of beide. Tot nu werd ervan uitgegaan dat in de loop van de jaren zeventig de isolatie van woningen verbeterde, er daardoor minder goed werd geventileerd, wat een stijging van de radonconcentratie tot gevolg zou hebben gehad. Omdat de radonconcentratie (alleen radon) in de derde survey niet goed te vergelijken is met de gerapporteerde radonconcentratie (radon en thoron) uit eerdere jaren, is deze verklaring echter niet te toetsen. Daar staat tegenover dat de overgang van 1993 naar 1994 eigenlijk alleen door het (bij)meten van thoron in 1993 is te verklaren. De toename in de zeventiger jaren is dan ook, in ieder geval deels, te verklaren door een toename van de thoronconcentratie. Ventilatie en andere bouwwijze zijn bij thoron minder van belang dan het toegepaste bouw materiaal. Omdat van de belangrijkste bouwmaterialen, zoals beton en kalkzandsteen de concentraties van radionucliden bekend zijn, maar geen verwachte aanleiding geven tot hoge thoronconcentraties, ligt de aandacht voor nader onderzoek nu bij de afwerkmaterialen. Kandidaat-bouwmaterialen zijn stucgips (fosfogips), leem (opkomend als afwerk materiaal) en spachtelputz (op basis van marmer). Fosfogips komt vrij bij de fosforzuur- en kunstmestproductie. Het is veel gebruikt in bouwmaterialen en blijkt nog lang te zijn toegepast in stuc [36].

In welke mate dat fosfogips een bijdrage levert aan de thoronconcentratie in woningen en gebouwen is afhankelijk van een aantal factoren. Gedacht moet daarbij worden aan onder andere:

- het gebruik van fosfogips als bouw materiaal (marktaandeel industriële gips en ontwikkeling daarvan);
- het gebruik in nieuwbouw versus bestaande bouw;
- de herkomst van het fosfaatgesteente (sedimentair en/of magmatisch);
- de ontwikkeling van het product fosfogips zelf in de zin van bijmenging van andere grondstoffen.

Overeenkomstig mondelinge informatie van de sector zelf geldt voor Nederland dat er in de periode van de eerste, tweede en derde survey de genoemde factoren significant zijn veranderd. In deze zin is dan ook nader onderzoek gewenst.

De veel hogere concentraties van de (moeder)radionucliden waaruit radon en thoron ontstaan, geven bij deze stuc vooral aanleiding tot veel hogere thoronconcentraties in de betreffende ruimte (zie ook de meetresultaten in 4.2.2). Deze worden namelijk, zoals eerder beschreven (zie 2.2), vooral bepaald door de buitenste laag/schil/het oppervlak van een bouw materiaal (zie Figuur 3). Bij radon speelt dit veel minder, omdat radon ook van veel dieper uit het bouw materiaal nog kan exhaleren.

Bij veel hogere thoriumconcentraties in het bouw materiaal zullen ook hogere exhalatietempi van thoron horen, zoals hiervoor ook is vastgesteld. Exhalatie van thoron uit natuurgips is door Folkerts et al. [7] op gemiddeld circa  $0,12 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  geschat op basis van meetgegevens. Omdat in stuc met fosfogips volgens eigen metingen en eerder onderzoek zeker tien keer hogere concentraties van thorium en vervalproducten zijn gemeten [36] dan in natuurgips, zal de exhalatie naar verwachting ook zeker tien keer zo hoog zijn en dus circa  $1 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  bedragen, wat consistent is met de eerder beschreven metingen (zie 4.2.2.2). Met vergelijking 4-1 voor de thoronconcentratie (zie 4.2.2), kan dan eenvoudig de concentratie berekend worden. Op een afstand van de muur van 15 à 20 cm zijn dan thoronconcentraties mogelijk van  $30 - 80 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Met de FzK-detectoren zouden dan concentraties te meten zijn van  $30 - 55 \text{ Bq.m}^{-3}$  (iets meer dan de helft van de thoron + ongeveer  $14 \text{ Bq m}^{-3}$  radon), wat overeenkomt met de concentraties uit de tweede survey.

De stuc, waarin fosfogips is verwerkt, exhaleert relatief veel thoron, en er zijn aanwijzingen dat fosfogips vroeger – zeker tot 2000 – veel in stucmateriaal is gebruikt [36]. Wat tot voor kort vanaf de jaren zeventig een toename van de radonconcentratie leek (zie Figuur 1), kan dan ook ten minste deels een toename zijn geweest van de thoronconcentratie als gevolg van specifieke bouwmaterialen.

## 5.2 Consequenties van thoronmeting voor eerdere resultaten

Uit de meetresultaten van de derde survey in combinatie met de resultaten uit dit rapport kunnen enkele conclusies getrokken worden:

- De radon- ( $^{222}\text{Rn}$ -)concentraties in woningen van vóór 1994 zijn niet bekend. Mogelijk wijken ze niet sterk af van de in de huidige survey gemeten waarden, maar eventuele gevolgen van tussentijdse wijziging in bouw materiaal, isolatie en in ventilatiegedrag zijn niet bekend.
- De (gemiddelde) radonconcentratie sinds 1994 is vrij constant.
- Er zijn geen aanwijzingen dat de radonconcentratie tussen 1993 en 1994 aanzienlijk is gewijzigd door veranderingen in bouw wijze, toepassing van bouw materiaal of ventilatiegedrag. Het verschil dat zich voordoet tussen meetresultaten uit 1993 en 1994 kan dan ook alleen aan thoron toe te schrijven zijn.
- De thoron- ( $^{220}\text{Rn}$ -)concentratie in woningen van vóór 1994 of in ieder geval vóór 1984 lijkt te zijn toegenomen met het bouwjaar, want de gemeten toename (door radon en thoron) is groter dan de huidige radonconcentratie en kan dus niet alleen door radon veroorzaakt worden. Dan zou deze laatste begin jaren zestig negatief moeten zijn geweest, terwijl een lage (buitenlucht)concentratie het theoretisch minimaal haalbare is.

De bijdrage van thoron aan het gemiddelde ‘radon’-meetresultaat van de FzK-detectoren moet in 1993 circa  $17 \text{ Bq.m}^{-3}$  hebben bedragen. Omdat de detectoren  $1 \text{ Bq}$  thoron voor  $0,54 \text{ Bq } ^{222}\text{Rn}$  hebben aangezien, moet de gemiddelde thoronconcentratie toen ruim  $30 \text{ Bq.m}^{-3}$  hebben bedragen op de locatie van de detector. Omdat destijds aan de uitvoerders expliciet is aangegeven om de detectoren niet aan de muur op te hangen, maar ze op of in een kast te plaatsen, mag verwacht worden dat de afstand tot een muur al gauw  $10 \text{ à } 20 \text{ cm}$  bedraagt. Als op dergelijke afstanden een thoronconcentratie van meer dan  $30 \text{ Bq.m}^{-3}$  heerst, moet de wand een aanzienlijke thoronexhalatie hebben (in de orde van  $1 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ). Alleen als de detectoren direct aan de muur hebben gehangen (met het filter naar de muur gekeerd) kunnen dergelijke concentraties worden veroorzaakt door ‘normale’ exhalatietempi voor thoron (in de

orde van  $0,03 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ). Dit is gezien de bevestigingsmogelijkheden van de detector echter niet voor de hand liggend.

Ook in de kruipruimtemetingen is er een aanzienlijk verschil tussen de tweede survey (gemiddeld circa  $72 \text{ Bq.m}^{-3}$ ) en de huidige (circa  $45 \text{ Bq.m}^{-3}$ ). Ook de bodem exhaleert thoron en veelal meer dan 'gewone' bouwmaterialen (zie 2.2). De detectoren bevonden zich altijd enkele tientallen centimeters boven de grond.

Bij buitenmetingen (enkele meters boven de grond en veelal verwijderd van steenachtige bouwmaterialen) is geen grote invloed van de thoronconcentraties gevonden. Gezien de zeer lage concentraties worden de waarden daar vaak eerder bepaald door de detectielimiet van de detectoren.

### 5.3 De dosis en het risico van blootstelling van de bevolking

Zoals eerder aangegeven (zie 2.3) is een karakteristieke gemiddelde evenwichtsequivalente concentratie (EEC) van thoron in een woning circa  $0,5 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Wereldwijde schattingen voor de EEC van thoron in het binnenmilieu lopen uiteen van  $0,2 \text{ Bq.m}^{-3}$  tot  $12 \text{ Bq.m}^{-3}$  [8]. Hierbij moet worden opgemerkt dat de hoogste waarden in gebieden met vulkanisch gesteente worden bereikt en dat in de met Nederland vergelijkbare landen de waarden tussen  $0,2$  en  $1,1 \text{ Bq.m}^{-3}$  liggen. De corresponderende schattingen voor de effectieve dosis op jaarbasis ten gevolge van blootstelling aan thoron binnenshuis liggen (met de aanname van 90% verblijftijd) dan tussen  $0,06 \text{ mSv}$  en  $0,35 \text{ mSv}$ . Daarbij dient er dan geen sprake te zijn van specifieke thoriumhoudende bodems of bouwmaterialen. Indien er in een deel van het woningbestand sprake is van aanzienlijk hogere exhalatietempi voor thoron door de toepassing van bijvoorbeeld fosfogips bevattende bouwmaterialen, zijn ook beduidend hogere concentraties in de woning mogelijk. Van belang is in dit kader welke bronnen er in een woonruimte zijn. Zo zal veelal slechts een deel van de bouwmaterialen in een woonruimte een verhoogde thoronconcentratie tot gevolg hebben. Ook verschillende afwerkingen van een plafond of wand (wel/geen stuc) is van belang. Het is dus niet op voorhand te zeggen hoe groot de dosisbijdrage van thoron in een woning uit een specifiek jaar zal zijn zonder extra (meet)informatie. Een bereik voor de EEC van thoron kan wel worden gegeven, namelijk oplopend tot circa  $10 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Dit volgt direct uit de hogere exhalatie van thoron uit bijvoorbeeld stuc van fosfogips ten opzichte van de 'normale' exhalatie van bouwmaterialen zoals beton (ongeveer een factor 20 hoger). De gemiddelde EEC zal dan ook ongeveer een factor 20 toenemen, dat wil zeggen van  $0,5$  tot  $10 \text{ Bq.m}^{-3}$ .

De dosis die door thoron wordt veroorzaakt bedraagt dan, met de eerder genoemde DCC van  $40 \text{ nSv}$  per  $\text{Bq.h.m}^{-3}$ ,  $0,06\text{-}3 \text{ mSv.a}^{-1}$  bij een verblijf van 90% binnenshuis. Hierbij moet worden aangetekend dat de laagste waarde verwacht wordt bij woningen waar geen specifiek hoge thoronexhalatie wordt verwacht en dat de hoogste waarde geldt voor woningen waarin alle wanden (ook plafonds) sterk verhoogde thoronexhalatie hebben. Uit meer recente inzichten lijkt voor de DCC van thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) een bijstelling naar boven met mogelijk een factor 2 waarschijnlijk [10]. De ICRP heeft voor radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) al aangekondigd dat de DCC naar boven bijgesteld zou moeten worden.

Het effect op de mens van thoron is hetzelfde als van radon, namelijk de ontwikkeling van longkanker. Door de Gezondheidsraad is het risico van radon geschat op circa 800 gevallen van longkanker per jaar in Nederland, uitgaande van een gemiddelde radonconcentratie van  $23 \text{ Bq.m}^{-3}$  [45]. Bij de huidige radonconcentratie in nieuwbouw zou dit aantal circa 470 zijn. Hoe het is gesteld voor oudere woningen kan nu niet worden vastgesteld. De extra bijdrage door thoron is (nog) niet door de Gezondheidsraad in beschouwing genomen. Op basis van de dosisbeschouwing zou dit een aantal van 180 - 1000 kunnen zijn. Deze hoogste waarde geldt echter alleen als circa 25% van de woningen in Nederland van

bouwmaterialen is voorzien waaruit sterk verhoogde thoronconcentraties ontstaan. Hoe wijdverbreid het gebruik van dergelijke bouwmaterialen is, is echter niet duidelijk.

Ondanks de lagere risicoschatting voor radon vergeleken met eerdere schattingen, is het dus zeer goed mogelijk dat het totale risico door radon en thoron boven de eerdergenoemde 800 gevallen van longkanker per jaar uit komt. Zonder nader onderzoek zijn hier echter geen definitieve getallen te geven.

## 6 Conclusies en aanbevelingen

### 6.1 Conclusies van het huidige onderzoek

Uit onderzoek is gebleken dat de in eerdere surveys toegepaste passieve radondetectoren naast radon ook thoron hebben meegemeten. De radonconcentratie in nieuwbouwwoningen is daarmee aanzienlijk lager dan uit eerdere surveys geconcludeerd is. De in de vorige surveys gemeten toename blijkt in belangrijke mate te zijn veroorzaakt door thoron. Gezien enerzijds de plaatsing van de detectoren en anderzijds de hoogte van de thoronconcentratie ter hoogte van de detectoren, lijkt er sprake te zijn van een of meer bouwmaterialen met verhoogde thoronexhalatie.

### 6.2 Consequenties voor andere onderzoeken

De radonconcentraties zoals die in de huidige survey zijn gemeten, zijn niet alleen lager dan in de vorige surveys, maar ook lager dan gepresenteerd door België, zie bijvoorbeeld [46], en door Duitsland [47]. Beide landen geven voor gemeenten in de grensgebieden met Nederland radonconcentraties van veelal meer dan  $30 \text{ Bq.m}^{-3}$ , in overeenstemming met de vroegere radonconcentraties in Nederland. Het is niet mogelijk om dit voor alle metingen na te gaan, maar een deel van die metingen is waarschijnlijk ook gebaseerd op door thoron beïnvloede metingen. Het FzK-type radondetector is namelijk ook in België en Duitsland gebruikt. Het lijkt onwaarschijnlijk dat er precies bij de grensovergang (en langs de gehele grens tussen Nederland en buurlanden) een sprong in de radonconcentratie is te verwachten.

Een ander probleem van deze thoron beïnvloeding van de gemeten radonconcentraties is dat mogelijk epidemiologisch onderzoek ook gebaseerd is op radonconcentraties die te hoog zijn geschat. Er zijn al onderzoeken gestart naar mogelijke effecten [16, 48]. Indien er sprake zou zijn van een dergelijke beïnvloeding van de meetresultaten, dan zou dit een verhogend effect kunnen hebben voor de DCC van radon.

### 6.3 Aanbevelingen voor nieuw onderzoek

Gezien de consequenties van de thoronmetingen voor de resultaten van de eerdere surveys (zie 5.2) is het voor het verkrijgen van een goed overzicht van de blootstelling van de Nederlandse bevolking van belang om de volgende onderzoeken te doen:

#### *Survey*

- de radonconcentratie in woningen uit het gehele woningbestand, of in ieder geval in woningen van vóór 1994 met radondetectoren (die *geen* thoron meemeten);
- de thoronconcentratie in woningen uit het gehele woningbestand met specifiek voor het meten van thoron geschikte detectoren voor het meten van een representatief beeld van de exhalatie van thoron in woningen.

### *Specifiek onderzoek*

- thoronvervalproducten (in het bijzonder  $^{212}\text{Pb}$  en  $^{212}\text{Bi}$ ), omdat die vrij direct verantwoordelijk zijn voor de dosis door thoron;
- de exhalatie van (radon en) thoron uit bouw materiaal (kaal en van eventuele afwerkingslagen voorzien);
- een inzicht in de toepassing van bouwmaterialen in woningen met nadruk op die materialen die tot op heden minder aandacht hebben gekregen, zoals afwerkmaterialen;
- een conversiematrix (eventueel CFD-model) die een modelmatige beschrijving geeft van de diverse processen die in een woonruimte plaatsvinden en die de verschillende (meet)gegevens met elkaar in verband brengt. Zo kunnen de vervalproductconcentraties worden afgeleid van de thoronconcentratie en/of exhalatie;
- voor de stralingsbelasting van de bevolking is het van belang te weten wat de omgezette hoeveelheden van het betreffende stuc zijn geweest en waar en hoelang die is toegepast in woningen en of die nog wordt toegepast. Waarschijnlijk geeft alleen een survey hiervan een representatief beeld.
- nader onderzoek aan (andere) afwerkmaterialen (bijvoorbeeld stuc op basis van leem, spachtelputz op basis van marmer) is nodig om zicht te krijgen op mogelijke andere bronnen van thoron.

Omdat bijvoorbeeld het meten van thoronvervalproducten arbeidsintensief is en om dure apparatuur vraagt, is het geen methode die eenvoudig is toe te passen in een uitgebreide nieuwe survey. Om die reden zou het alleen al belangrijk zijn om een conversiematrix ter beschikking te hebben die met bijvoorbeeld alleen een thoronconcentratie meting een thoronvervalproductconcentratie kan opleveren en daarmee een dosis. Het CFD-model, zoals dat door NRG is ontwikkeld [41], is daarbij mogelijk een goed hulpmiddel. Wel dient dit model nog specifiek voor thoron(vervalproducten) geijkt te worden. Dit kan eigenlijk alleen door enerzijds online-metingen te doen van de thoronvervalproductconcentraties en anderzijds het model het gemeten verloop in verschillende verblijfsruimten te laten reproduceren. Daarvoor moeten ook allerlei andere parameters worden gemeten, zoals drukverschillen, flow-rates en temperatuur binnen- en buitenshuis.

## 7 Literatuur

- [1] Put LW, Veldhuizen A, De Meijer RJ - Radonconcentraties in Nederland, Verslag van SAWORA - project A2, rapport KVI-111i, Groningen (1985)
- [2] Stoop P, Glastra P, Hiemstra Y, De Vries L, Lembrechts J – Results of the second Dutch national survey on radon in dwellings, RIVM Report 610058006, Bilthoven (1998)
- [3] Blaauboer RO, Dekkers SAJ, Slaper H, Bader S - Stralingsbelasting in nieuwbouwwoningen - voorlopige resultaten. RIVM briefrapport 610790004, RIVM, Bilthoven (2008)
- [4] Vaas LH, Kal HB, De Jong P, Slooff W (eds.) - Basisdocument Radon, RIVM-rapport 710401014, RIVM, Bilthoven (1991)
- [5] Sources, effects and risks of ionizing radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), 1988 report to the General Assembly, with annexes, United Nations, New York, NY (1988)
- [6] Nazaroff WW, Nero AV (eds.) – Radon and its decay products in indoor air, Wiley Interscience, New York, NY (1988)
- [7] Folkerts KH, Keller G, Muth H - Experimental investigations on diffusion and exhalation of Rn-222 and Rn-220 from building materials, Radiation Protection Dosimetry 7 (1-4): 41-44 (1984)
- [8] Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces, ANNEX E of Effects of ionizing radiation, Volume I, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), 2006 report to the General Assembly, with scientific annexes, United Nations, New York, NY (2006)
- [9] Lung cancer risk from indoor exposures to radon daughters, International Commission on Radiological Protection (ICRP), Annals of the ICRP 17(1), ICRP Publication 50, Pergamon Press, Oxford (1987)
- [10] Kendall GM, Phipps AW - Effective and organ doses from thoron decay products at different ages, Journal of Radiological Protection 27(4): 427-435 (2007)
- [11] Bader S, Dekkers SAJ, Blaauboer RO - Ventilatie en de samenhang met radon in nieuwbouwwoningen in Nederland. Resultaten en analyses van tracermetingen in het project VERA, RIVM-rapport 610790006, RIVM, Bilthoven (2009)
- [12] Tokonami S. - Summary of dosimetry (radon and thoron) studies, International Congress Series 1276: 151-154 (2005)
- [13] Tokonami S, Kovacs T, Sugino M, Kavasi N, Takahashi H, Kobayashi Y, Sorimachi A, Ishikawa T, Yoshinaga S - Influence of environmental thoron on radon measurements and related issues, Paschoa AS, Steinhäusler F (eds.), The Natural Radiation Environment - 8th International Symposium (NRE VIII); Buzios, Rio de Janeiro, Brazil. Melville, New York: American Institute of Physics p. 145-148. 524 pp. AIP Conference Proceedings. Vol. 1034, ISBN: 978-0-7354-0559-2 (2008)
- [14] Vargas A, Ortega X - Influence of environmental changes on integrating radon detectors: results of an intercomparison exercise, Radiation Protection Dosimetry 123(4): 529-536 (2007)
- [15] Tokonami S, Yang M, Sanada T. - Contribution from thoron on the response of passive radon detectors. Health Physics 80(6): 612-615 (2001)
- [16] Doi K, Tokonami S, Yonehara H, Yoshinaga S - A Simulation Study of Radon and Thoron Discrimination Problem in Case-Control Studies. Journal of Radiation Research - Advance Publication 12 August (2009)

- [17] Yamada Y, Tokonami S, Zhuo W, Yonehara H, Ishikawa T, Furukawa M, Fukutsu K, Sun Q, Hou C, Zhang S, Akiba S - Rn–Tn discriminative measurements and their dose estimates in Chinese loess plateau, International Congress Series 1276: 76-80 (2005)
- [18] Yamada Y, Sun Q, Tokonami S, Akiba S, Zhuo W, Hou C, Zhang S, Ishikawa T, Furukawa M, Fukutsu K, Yonehara H - Radon-Thoron Discriminative Measurements in Gansu Province, China, and Their Implication for Dose Estimates. Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A: Current Issues 69(7): 723-734 (2006)
- [19] Shang B, Tschiersch J, Cui H, Xia Y - Radon survey in dwellings of Gansu, China: the influence of thoron and an attempt for correction. Radiation and Environmental Biophysics 47(3): 367-373 (2008)
- [20] Yonehara H, Tokonami S, Zhuo W, Ishikawa T, Fukutsu K, Yamada Y - Thoron in the living environments of Japan. International Congress Series 1276: 58-61 (2005)
- [21] Thoron Kalibrierung der Radon/Thoron-Monitore und der Einfluss auf Kernspur-Radondosimeter, BMU - 2004-648, Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Arbeitsgruppe RS I 1, Bonn (2004)
- [22] Steinhäusler, F. - Environmental <sup>220</sup>Rn: A review, Environment International 22(Suppl. 1): S1111-S1123 (1996)
- [23] Doi M, Fujimoto K, Kobayashi S, Yonehara H - Spatial distribution of thoron and radon concentrations in the indoor air of a traditional Japanese wooden house, Health Physics 66(1): 43-49 (1994)
- [24] Ma J, Yonehara H, Aoyama T, Doi M, Kobayashi S, Sakanoue M - Influence of air flow on the behavior of thoron and its progeny in a traditional Japanese house, Health Physics 72(1): 86-91 (1997)
- [25] Bochicchio F, Venuti GC, Nuccetelli C, Risica S, Tancredi F - Indoor measurements of Rn-220 and Rn-222 and their decay products in a mediterranean climate area. Environment International. 22(Suppl. 1): S633-S639 (1996)
- [26] Nuccetelli C, Bochicchio F - The thoron issue: monitoring activities, measuring techniques and dose conversion factors, Radiation Protection Dosimetry. 78(1): 59-64 (1998)
- [27] Li Y, Schery SD, Turk B - Soil as a source of indoor <sup>220</sup>Rn. Health Physics 62(5): 453-457 (1992)
- [28] Shang B, Chen B, Gao Y, Wang Y - Thoron levels in traditional Chinese residential dwellings. Radiation and Environmental Biophysics 44(3): 193-199 (2005)
- [29] Zhuo W, Iida T, Yang X - Environmental Radon and Thoron Progeny Concentrations in Fujian Province of China. Radiation Protection Dosimetry 87(2): 137-140 (2000)
- [30] Tokonami S, Takahashi H, Kobayashi Y, Zhuo W, Hulber E - Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey, Review of Scientific Instruments 76(11): 1-5 (2005)
- [31] Röttger A, Honig A, Arnold D - The German thoron progeny chamber-Concept and application. Applied Radiation and Isotopes 67(5): 839-842 (2009)
- [32] Kobayashi Y, Tokonami S, Takahashi H, Zhuo W, Yonehara H - Practicality of the thoron calibration chamber system at NIRS, Japan, International Congress Series 1276: 281-282 (2005)
- [33] Proctor LA - A study of indoor <sup>220</sup>Rn and <sup>222</sup>Rn decay product concentrations in the UK, Radiation Protection Dosimetry 121(2): 175-178 (2006)
- [34] Chen J, Schroth E, MacKinlay E, Fife I, Sorimachi A, Tokonami S - Simultaneous <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn measurements in Winnipeg, Canada. Radiation Protection Dosimetry 134(2): 75-78 (2009)

- [35] Mjönes L, Falk R, Mellander H, Nyblom L, Nilsson I -  $^{220}\text{Rn}$  and its progeny in buildings in Sweden. *Environment International* 22(Suppl.1): 1125-1133 (1996)
- [36] De Jong P, Van Dijk W, Burger HP -  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  concentrations in gypsum plasters and mortars used in the Netherlands. *Proc. 2nd Int. Symp. on Naturally Occurring Radioactive Materials (NORM II)*. Nov. 10-13, Krefeld, Duitsland.(1998)
- [37] Tschiersch J, Li WB, Meisenberg O - Increased indoor thoron concentrations and implication to inhalation dosimetry, *Radiation Protection Dosimetry* 127(1-4): 73-78 (2007)
- [38] Katase A, Matsumoto Y, Sakae T, Ishibashi K - Indoor concentrations of Rn-220 and its decay products, *Health Physics* 54(3): 283-286 (1988)
- [39] Yamasaki T, Guo Q, Iida T - Distributions of thoron progeny concentrations in dwellings, *Radiation Protection Dosimetry* 59(2): 135-140 (1995)
- [40] Zhuo W, Iida T, Moriizumi J, Aoyagi T, Takahashi I - Simulation of the concentrations and distributions of indoor radon and thoron, *Radiation Protection Dosimetry* 93(4): 357-368 (2001)
- [41] De With G, De Jong P - Modellering van de thoron- en thorondochterconcentraties in het binnenmilieu, NRG, NRG-912089/09.93696, Arnhem (2009)
- [42] Zhuo W, Tokonami S - Convenient methods for evaluation of indoor thoron progeny concentrations, *International Congress Series*, 1276: 219-220 (2005)
- [43] Durrani SA, Ilić R (eds.) – Radon measurements by etched track detectors. ISBN 9810226667, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore (1997)
- [44] Eggink GJ - Radiologische aspecten van opslag en lozing van afvalstoffen door de fosfaatindustrie, RIVM Rapport 610050003/1995, Bilthoven (1995)
- [45] Radon - Toetsing rapport 'BEIR VI', Gezondheidsraad, Den Haag, Rapport Nr 2000/05, 8 februari 2000, ISBN: 90-5549-306-6 (2000)
- [46] Zie website van het FANC, de radonconcentratie per gemeente in België, <http://www.fanc.fgov.be/nl/page/de-radonconcentratie-in-uw-gemeente/661.aspx> (laatst bezocht op 21 januari 2010)
- [47] Zie website van het Bundesamt für Strahlenschutz, Radon in woningen, [http://www.bfs.de/de/ion/radon/radon\\_in\\_haeusern.html](http://www.bfs.de/de/ion/radon/radon_in_haeusern.html) (laatst bezocht op 21 januari 2010)
- [48] Bochicchio F, Ampollini M, Tommasino L, Sorimachi A, Tokonami S - Sensitivity to thoron of an SSNTD-based passive radon measuring device: Experimental evaluation and implications for radon concentration measurements and risk assessment, *Radiation Measurements* 44(9-10): 1024-1027 (2009)

**RIVM**  
Rijksinstituut  
voor Volksgezondheid  
en Milieu

Postbus 1  
3720 BA Bilthoven  
[www.rivm.nl](http://www.rivm.nl)