

Promovendus: Ioana Cozmuta  
Voorlopige promotiedatum: 07-12-2001  
Promotor: Prof. dr. R.J. de Meijer  
Titel proefschrift: Radon generation and transport - A Journey through Matter

## NEDERLANDSE SAMENVATTING

Het doel van dit proefschrift is de fundamentele kennis over productie en transport van radon in beton te vergroten. Deze kennis kan dan ten grondslag liggen aan nieuw te ontwikkelen methoden om de radonafgifte van beton te reduceren door veranderingen in bijvoorbeeld de produktietechniek van beton of door het gebruik van effectieve afdekmaterialen. Het onderzoek sluit aan bij het huidige streven van de Nederlandse overheid om te komen tot een regulering en zo mogelijk reductie van de radonconcentratie binnenhuis. In Nederland leveren de bouwmaterialen en in het bijzonder beton de grootste bijdrage aan deze concentratie.

In dit proefschrift is het transport van radon in beton op meso-schaal niveau als een door diffusie gedomineerd proces<sup>1</sup> beschreven. De beschrijving van radondiffusie in een homogeen poreus materiaal (eerder gevalideerd voor zand), vindt plaats via een tijdafhankelijke diffusievergelijking waarbij drie fasen in het medium beschouwd worden te weten, gas, water en vaste stof. Deze vergelijking bevat ook de productie en het verval van radon. Voor het bevestigen van dit model voor beton, is gedetailleerde informatie nodig over de radiometrische eigenschappen, porositeit en poriegrootteverdeling, vochtverdeling, radonemanatie- en diffusiecoëfficiënt van betoncomponenten en beton.

Zoals in alle natuurlijke materialen, is de bron van radon in beton, het radium dat in de verschillende componenten (zand, grind en cement) aanwezig is. Onze metingen tonen dat de radiumconcentratie van cement een orde van grootte hoger is dan die van de andere componenten. In droge poedervorm heeft cement een vrij lage radonuitstoot, maar na verwerking levert cement van alle componenten de grootste bijdrage aan de radonexhalatie. Het radiumgehalte van beton kan als gewogen som van het radiumgehalte van de componenten berekend worden. Voor de radonexhalatiesnelheid geldt dit ook mits het gehydrateerde cement wordt meegenomen. Dus tijdens het maken van beton wordt de radonexhalatiesnelheid een orde van grootte groter. De radonexhalatiesnelheid is afhankelijk van de structurele eigenschappen van het poreuze materiaal. In het geval van droog cement, is de structuur van de korreltjes veel dichter dan die van de gehydrateerde cementpasta waarin gedurende de hydratatie zogenaamde gelporiën worden gevormd. Een goed begrip van het ontstaan van de microstructuur in beton en de invloed van hydratatie en vochttransport op dit proces is dan ook van fundamenteel belang om het radontransport in beton te beschrijven.

Uitgaande van de hypothese dat het hier gebruikte ggbs (ground granulated blastfurnace slag) beton als een homogeen poreus medium gemodelleerd kan worden, is met het betonmodelleringsprogramma DuCOM een volumetrische porositeit van circa 10% voor dit beton berekend. Een resultaat dat in goede overeenstemming is met onze metingen. De DuCOM-berekeningen tonen ook aan dat in beton de totale porositeit is verdeeld in gelporiën (40%), capillaire poriën (35%) en zogenaamde interlayer porositeit (25%). De karakteristieke poriestraal van de gelporiën is ongeveer  $10^{-9}$  m terwijl die voor de capillairen tussen  $10^{-7}$ - $10^{-8}$  m ligt. Het porievolume in ggbs beton kan waarschijnlijk het best beschreven worden door capillaire poriën die opgevuld zijn met gelporiën, waardoor een zeer kronkelige microstructuur ontstaat.

Gelporiën zijn een produkt van cementhydratatie en hun totale volume is afhankelijk van de verhouding tussen water en cement (water-cementfactor) bij het aanmaken van het beton.

---

<sup>1</sup> Aangezien de meest bouwmaterialen een lage permeabiliteit hebben zal advectief transport in het algemeen van ondergeschikt belang zijn..

Water speelt niet alleen een belangrijke rol in het begin van hydratatie (samenstelling en uitharden/curing van beton) maar ook gedurende de gehele levensduur. Veranderingen in de relatieve vochtigheid van de omgeving leiden tot veranderingen van het inwendig vochtgehalte en vochtverdeling en beïnvloeden daarmee de verschillende transportparameters.

In dit proefschrift is de vochtafhankelijkheid van de radondiffusiecoëfficiënt van beton gemeten. Deze afhankelijkheid lijkt enigszins op die voor zand met het verschil dat de waarden voor beton twee orden van grootte kleiner zijn. Dit is een rechtstreeks gevolg van de kronkelige microstructuur van beton en van de aanwezigheid van gelporiën. Die poriën zijn zo klein dat niet de gebruikelijke diffusie maar de zogenaamde Knudsen diffusie optreedt.

De vochtafhankelijkheid van de radonemanatie van beton is geheel verschillend van die van zand. Voor zand wordt al bij een lage vochtverzadiging van de poriën een maximale waarde voor de radonemanatie gevonden die constant blijft tot hogere verzadigingsgraden. Voor beton stijgt de radonemanatie over het gehele traject van volkomen droog tot volledig waterverzadigd, lineair. Radon dat geproduceerd wordt in het verval van radium krijgt een zogenaamde 'recoil'-energie mee. Met die energie kan het radonatoom een afstand van 63  $\mu\text{m}$  in lucht en 0,1  $\mu\text{m}$  in water afleggen voordat het atoom vrijwel tot rust is gekomen. Dus in droog materiaal bestaat voor de poriën die een kleinere diameter hebben dan 63  $\mu\text{m}$  de kans dat het radonatoom de overliggende poriewand binnendringt. Het radonatoom zit dan in de minerale matrix opgesloten en is effectief niet meer beschikbaar voor transport. Indien het materiaal vochtig is zal een waterlaagje op de poriewand in het algemeen voldoende zijn om het radonatoom te stoppen en dan is het radonatoom, via uitwisseling tussen lucht- en waterfase, wel beschikbaar voor transport. Zand heeft in het algemeen een nauwe porieverdeling, dit betekent dat bij toenemend vochtgehalte alle poriën in dezelfde mate gevuld zijn en bij een bepaalde waterverzadiging zal al het radon dat emaneert in de waterfase gevangen worden. De radonemanatie wordt vanaf een bepaalde verzadigingsgraad al constant. Beton heeft een hele brede porieverdeling, dus bij stijgende verzadiging worden steeds nieuwe poriën gevuld, beginnend bij de poriën met de kleinste diameter. Dit zal leiden tot de waargenomen lineaire afhankelijkheid van het vochtgehalte van de radonemanatie uit beton.

Het gemeten vochtafhankelijke gedrag van radondiffusie- en -emanatiecoëfficiënten is gebruikt in het radontransportmodel om de verandering van de radonexhalatiesnelheid van beton als functie van vochtgehalte te beschrijven. Tussen het zo gemodelleerde gedrag en het gemeten gedrag wordt zeer goede overeenstemming gevonden. Deze overeenstemming wijst erop dat ofschoon beton in principe een complex en heterogeen poreus materiaal is, er onder sommige omstandigheden, een goede beschrijving van de radoneigenschappen van beton verkregen kan worden. De radonafgifte van beton kan goed gemodelleerd worden op basis van de multi-fase radontransportvergelijking. Een combinatie van een radontransportmodel en een model voor betonmicrostructuur zal tot een krachtig hulpmiddel leiden dat bij het ontwerpen van betonsoorten met een lage radonproductie gebruikt kan worden. Verbetering van de modellering moet hoofdzakelijk in een betere schatting van de invoerparameters gezocht worden, in het bijzonder de vochtafhankelijkheid van de emanatiecoëfficiënt en de vochtverdeling in het beton. Ook de eventuele adsorptie van radon aan het inwendig oppervlakte van beton, tot nu toe verontachtzaamd, dient nader onderzocht te worden.

Voor de modellering van binnenlucht radonconcentraties is het feit van belang dat onze berekeningen leiden tot een maximale radonafgifte van beton in een woning bij waarden van de relatieve vochtigheid tussen 30% en 70%. Verder laat een modelberekening van de bijdrage van bouwmaterialen aan de binnenlucht radonconcentraties zien dat deze tenminste 50% lager uitvalt dan de schatting van het tweede Nederlandse radononderzoek. Dit kan wijzen op een nog onbekend transportproces dat een belangrijke bijdrage levert aan de radonconcentratie binnenhuis. Ons model is gebaseerd op radontransport dat uitsluitend door diffusie wordt bepaald. Het is mogelijk dat drukverschillen over het bouw materiaal toch een belangrijk invloed kunnen hebben. Voor de radonbronsterkte van de bodem heeft eerder onderzoek laten zien dat dit een

orde-van-grootte effect kan zijn. Indien een dergelijk drukafhankelijk mechanisme ook in bouwmaterialen (beton) een rol speelt, kan dit (gedeeltelijk) het verschil tussen de berekeningen en de metingen verklaren.

Een alternatieve methode ter vermindering van radonafgifte uit beton is het afdekken van het oppervlak. De mate van reductie van verschillende coatings en folies voor de radonafgifte van beton is in dit proefschrift gemeten. Onze conclusie is dat de meeste 'eenvoudige' manieren van afdekken van beton niet tot goede remming van de radonuitstoot leiden. Een bijna totale reductie van de radonafgifte werd gemeten voor zogenaamde 'high-performance' polymeer-membranen (PMMA en PPTA). Voor het ontwerp van radonremmende polymeer-membranen, wordt in dit proefschrift een methode beschreven die gebaseerd is op zowel Moleculaire Modelling als Monte Carlo methoden.

Het in dit proefschrift beschreven onderzoek heeft als doel uitgebreidere kennis te verwerven van radontransport in beton. Voor dit doel zijn alle drie soorten methoden gebruikt die tegenwoordig in de wetenschap beschikbaar zijn: experimenten, theorie en computersimulaties. De combinatie van deze drie methoden heeft een beter beeld gegeven van de fysica van radontransport in beton en in membranen. Toepassingen van de verkregen kennis kunnen leiden tot reductie van de radonuitstoot van beton en zo tot een mogelijke verlaging van radonconcentraties binnenhuis.