

A barometrikus pumpa hatása a radon és a toron exhalációjára

Csige István*

Debreceni Egyetem - MTA Atommagkutató Intézete, Kihelyezett Környezetfizikai Tanszék,
4026 Debrecen Bem tér 18/c,
csige@atomki.hu

Title – Barometric pumping effect on radon and thoron exhalation rate

Abstract – Fluctuation of atmospheric pressure induces gas flow in the unsaturated surface layers of soils. Pressure drops suck all soil gases into the atmosphere while pressure rise push back only fresh air. This way, pressure variation induced soil gas transport has a pumping effect on the gases that originate in the soil. In this work, we have shown that this barometric pumping effect is common in case of radon gas and in certain circumstances it is the dominant factor that determines the rate of radon exhalation. Our measurements in caves and in wine cellars showed that the phenomena is common and by comparison with model calculations we have found that it is most profound in case of fractured porous embedded medium. Our model calculations also show that the effect on the exhalation rate on soil surface is much greater for thoron (^{220}Rn) than for radon (^{222}Rn). By measuring the depth profile of radon and thoron activity concentration in soil gas we have experimentally verified this difference. These results suggests that in those cases when barometric pumping is the dominant factor in radon exhalation it is more likely that thoron may also be present in significant amount.

Keywords- Barometric pumping, radon, underground quarries, cave, wine cellar

Kivonat – Az atmoszférikus légnyomás időbeli változásai, fluktuációja gázmozgásokat idéz elő a talaj felszínközeli telítetlen rétegeiben. A talajban keletkező gázokra nézve ez a gázmozgás egy aszimmetrikus jelleggel bír. Csökkenő légnyomás esetén a talajban keletkező gázok a légkörbe távoznak, míg növekvő légnyomás esetén a talajba csak a légköri gázok nyomulnak vissza. Vagyis a légnyomásváltozás okozta talajgáz-áramlás a talajban keletkező gázokra nézve egy szivattyú-hatást jelent. Ebben a munkában kimutatjuk, hogy ez a barometrikus szivattyú (vagy pumpa) néven ismert jelenség a radon gáz esetén is jól megfigyelhető, és bizonyos körülmények között a talajból való radonkibocsátás (radonexhaláció) meghatározó tényezője. Barlangokban és borospincékben végzett mérésekkel kimutattuk, hogy a jelenség igen gyakori, és modellszámításokkal való összevetéssel igazoljuk, hogy akkor meghatározó jelentőségű, amikor a befoglaló közeg repedezett porózus közegnek tekinthető. Modellszámításaink szerint, amit a talajfelszín közelében végzett radon- és toronprofil mérésekkel is igazoltunk, az effektus a toron (^{220}Rn) esetében sokkal nagyobb, mint a radon (^{222}Rn) esetén. Így azokban az esetekben, amikor a radonkibocsátás fő okozója a barometrikus radonszivattyú hatás, nagy valószínűséggel a toronnal is számolni kell.

Kulcsszavak – Barometrikus pumpa, radon, földalatti zárt terek, barlang, borospince

BEVEZETÉS

Közismert, hogy a lakosság természetes eredetű forrásokból származó sugárterhelésének körülbelül a fele, az UNSCEAR 2006 Report [10] szerint átlagosan évente mintegy 1,15 mSv tulajdonítható a ^{222}Rn , és 0,1 mSv a ^{220}Rn rövidéletű bomlástermékeinek a belégzéséből. A radon gáz a rádiumatomok bomlásából keletkezik. Színtelen, szagtalan nemesgáz. Környezetünkben fő forrása a kőzetek (talajok), építőanyagok, stb. rádiumtartalma, ritkább esetekben a vizek oldott radontartalma. A talajokból, falakból kilépve a radon zárt légte-

rekben, épületekben (lakások, munkahelyek, stb.) feldúsulhat. A levegőben lévő radonatomok bomlásából sugárzó fématomok keletkeznek, amelyek hozzátapadnak a levegőben lebegő porszemcsékhez. Ha belélegezzük, a por megtapad a tüdőben, és ezek a fématomok ott sugárzásukkal terhelik a tüdő érzékeny sejtjeit. Bányászok körében végzett epidemiológiai vizsgálatokból tudjuk, hogy a viszonylag magas (nagyobb, mint néhányszor 100 mSv) ^{222}Rn sugárterhelés megnöveli a tüdőrák kialakulásának kockázatát. Ismereteink szerint a lakásokban lévő ^{222}Rn bomlástermékek belégzése a lakosság körében is többlet tüdőrák előforduláshoz vezet. Egy Svédország-béli felmérés (Pershagen et al., 1994, [8]) szerint ez a hatás éves átlagban néhányszor 100 Bqm⁻³-nél több ^{222}Rn -t tartalmazó lakásokban élőknel már statisztikailag is szignifikáns (95%-os megbízhatósági szinten).

Szoktak a radonnal más célból is foglalkozni, nem csak sugárvédelmi megfontolásokból. Mivel a radon, még legnagyobb koncentrációban való előfordulásainál is csak egy igen-igen ritka nyomelem, másrészt radioaktivitása folytán könnyen mérhető, ideális nyomjelzője lehet bizonyos folyamatoknak. Különösen a geológiában használják egyes transzportfolyamatok tanulmányozására, földalatti gáz, ritkábban vízmozgások nyomonkövetésére. Így különösen alkalmasnak mutatkozott a légmozgások és szellőzési viszonyok nyomjelzésére barlangokban és borospincékben, de kiterjedt (igaz, eddig eredménytelen) kutatások folynak földrengés-előrejelzésre való alkalmazása területén is.

Összefoglalva, azok a transzportfolyamatok, amelyek révén a radon bekerül a környezetünkbe, fontos vizsgálat tárgyát képezik, mert ennek ismeretében tudunk hatékony védekezési módszereket kidolgozni ellene. Másrészt nyomjelzőként való használata is azt feltételezi, hogy a radon transzportját is magában foglaló terjedési modellek megalkotásával kvantitatívan is értelmezni tudjuk a mérhető térbeli és időbeli változásait. Ebben a munkában most azt vizsgáljuk, hogy az atmoszférikus légnyomás időbeli változása hogyan befolyásolja a kőzetek és a talaj radon (^{222}Rn) és a toron (^{220}Rn) kibocsátását.

MÉRÉSI HELYSZÍNEK

Az MTA debreceni Atommagkutató Intézetének Radon Csoportjában az elmúlt évtizedek során Magyarország, és a Kárpát-medence területén nagyon sok helyen végeztünk radonméréseket a ^{222}Rn és a ^{220}Rn környezetben való előfordulásának és transzportjának tanulmányozása céljából. Ezen vizsgálatok során sokszor kaptunk olyan mérési eredményeket, amelyek esetében úgy tűnt, hogy a ^{222}Rn -aktivitáskoncentráció változásait leginkább az atmoszférikus légnyomás változásai befolyásolják. Ebben a munkában ilyen mérési eredményekből válogattunk. A mérések helyszíne igen változatos, az egyes méréseknél, ahol ez indokolt, külön kitérünk rá.

MÉRÉSI MÓDSZEREK

A ^{222}Rn -aktivitáskoncentráció mérésére maratottnyom-detektoros és félvezető detektoros műszereket használtunk.

A Radamon típusú maratottnyom-detektoros radonmérő (Csige and Csegzi, 2001, [3]) egy kisméretű henger alakú eszköz, amelyben az alfa-részecskék detektálására egy CR-39 típusú maratottnyom-detektor lemez szolgál. Főleg a hosszú idejű átlagos ^{222}Rn -aktivitáskoncentráció meghatározására való. Előnye, hogy egyszerre sok mérési ponton nagyszámú mérés végezhető. A Radamon kísérleti kalibrációja az NRPB (National Radiation Protection Board, Chilton, UK) radonkamrájában történt (Whysall et al., 1996, [13]), és a vele mért érték EU (CEC) összeméréseken csak néhány %-kal tért el a névleges radonexpozíciós értéktől (pl. Miles et al., 1996, [5]).

A Radamonban alkalmazott 40 mikrométer vastagságú polietilén szűrőfólia a ^{220}Rn aktivitáskoncentrációját kb. 0,1%-ra csökkenti. Ugyanakkor, ha a detektorban csak

papírszűrőt alkalmazunk, akkor az átereszti a ^{220}Rn nagy részét (kb. 98%-át) is. Így tehát egy 2 db. Radamonból álló detektorpárral (1. ábra) meg tudjuk mérni a ^{222}Rn - és a ($^{222}\text{Rn} + ^{220}\text{Rn}$)-aktivitáskoncentrációt is, amiből a ^{220}Rn -aktivitáskoncentráció is megkapható.



1. ábra. ^{222}Rn - és ^{220}Rn - aktivitáskoncentráció mérése talajfelszínre kihelyezett Radamon detektorpárral (tényleges méret)

A Dataqua (Dataqua Kft., Balatonalmádi) gyártmányú félvezető-detektoros radonmonitorokat a gyártó az MTA Atommagkutató Intézetével és a Mecsekérc Rt.-vel együttműködésben fejlesztette ki (Várhegyi and Hakl, 1994, [11]). Ezekkel a műszerekkel lehetőség van a gyorsabb, jellemzően napi időbeli változások mérésére is. Automatikus üzemmódban a mérési adatokat saját memóriájában tárolja. Az ebben a munkában használt Dataqua radonmonitorok hőmérséklet és nyomás monitorozására is alkalmasak.

A LÉGKÖRI NYOMÁSVÁLTOZÁS HATÁSÁNAK MODELLEZÉSE

A környezetünkben előforduló radon keletkezésével és transzportjával kapcsolatos modellszámításaink elsősorban Rogers és Nielson, [9], illetve Nielson et al., [6] munkáin alapulnak. Ebben a fejezetben röviden összefoglalom a számításaim során használt modellek alapvető összefüggéseit.

A talaj pórusait részben kitöltő talajgáz a fellépő nyomásgradiensek miatt a talajban áramolhat. A gáz transzportját a telítetlen zónában a Darcy-egyenlettel közelítjük: $\bar{q} = -K / \mu (\text{grad} P - \rho \bar{g})$, ahol $\bar{q}$ a gáz térfogatáram-sűrűsége; K a talaj gázáteresztő-képessége; μ a gáz dinamikai viszkozitása; P a gáz nyomása; ρ a gáz sűrűsége; $\bar{g}$ a gravitációs gyorsulás. A talajgáz áramlásának kontinuitási egyenlete: $\varepsilon (\partial \rho / \partial t) = -\text{div}(\rho \bar{q})$, ahol ε a talaj gázporozitása. Az ideális gázokra vonatkozó állapotegyenlet: $p = \rho RT$, ahol R az adott gázra vonatkozó gázállandó és T a gáz hőmérséklete.

Az állapotegyenletből kifejezhetjük a gáz sűrűségét, és azt beírjuk a Darcy-törvénybe, valamint a kontinuitási egyenletbe, majd a Darcy-törvény szerinti térfogatáramot behelyettesítjük a kontinuitási egyenletbe, és így kapjuk a talajgáz áramlásának alapegyenletét:

$$\frac{\partial P}{\partial t} = \alpha \left\{ P \Delta P + \beta P \frac{\partial P}{\partial t} + (\nabla P)^2 \right\}, \text{ ahol } \alpha = \frac{K}{\mu \varepsilon}, \text{ és } \beta = \frac{2g}{RT}. \quad (1)$$

A radon gáz transzportegyenletét az alábbi alakba írhatjuk:

$$\beta \frac{\partial C}{\partial t} = D \text{div grad } C - \bar{q} \text{grad } C + G - \lambda \beta C, \quad (2)$$

ahol C a ^{222}Rn -aktivitáskoncentráció a póruster gázfázisában, $G = f \rho_d A_{Ra} \lambda$ a ^{222}Rn pórusterben való keletkezési üteme, f a ^{222}Rn kibocsátási tényező, ρ_d a száraz talaj sűrűsége; A_{Ra} a száraz talaj ^{226}Ra aktivitáskoncentrációja, λ a ^{222}Rn bomlási állandója. A póruster vízzel kitöltött hányadát víztelítettségnek nevezzük, és m betűvel jelöljük. Feltesszük, hogy a pórusterben lévő ^{222}Rn mindenkor az Otswald-féle megoszlási tényezőnek megfelelően oszlik meg a víz és a gázfázis között. Az L megoszlási tényező: $L = C_w / C_g$, aminek hőmérséklettől való függését a Clever H. L. [2] által levegőre összegyűjtött adatokból a következő formulával illesztettük: $L(T) = 0.425 \exp(-0.05 T) + 0.104$. $\beta = (1 - m + Lm)\varepsilon$, az úgynevezett megoszlás-korrigált porozitás. Mivel ebben a megközelítésben a víz és gázfázisban történő diffúziót nem tárgyaltuk elemi szinten, ezért a D_e effektív diffúziós együtthatóba van beépítve a diffúziós áram összes környezeti feltételtől való függése: $D_e = D_e(\varepsilon, m, \dots)$. A D_e (m^2s^{-1}) effektív diffúziós együttható porozitástól és a víztelítettségtől való függését Rogers és Nielson [9] szerint így közelíthetjük: $D_e = D_{e0} \exp(-6m\varepsilon - 6m^{14\varepsilon})$.

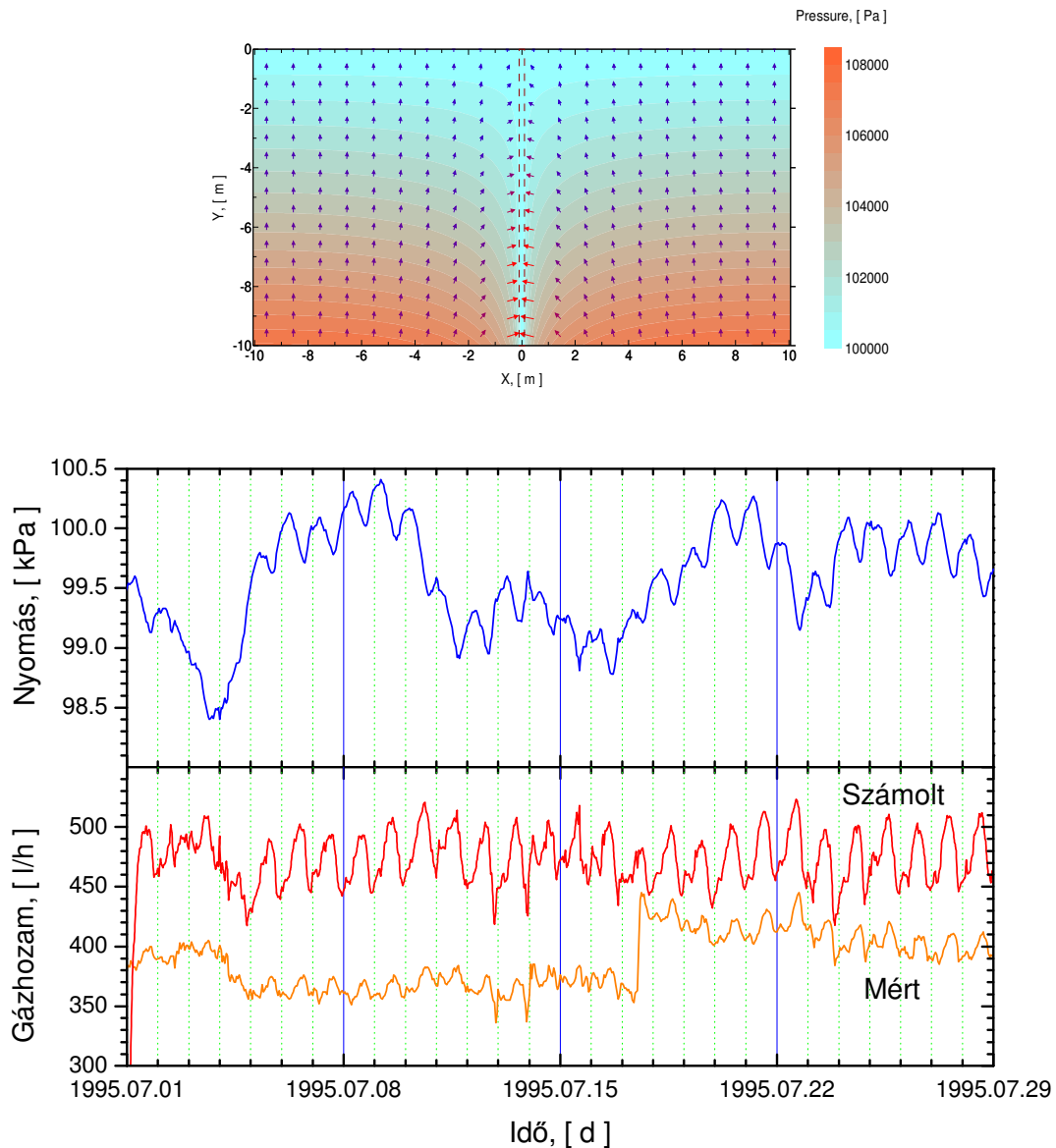
A radontranszport-programrendszerrel részt vettünk egy Európai Unió összehasonlító vizsgálatban (Andersen et al., 1999, [1]), amely igazolta, hogy számításaink pontos eredményeket adnak.

EREDMÉNYEK

A talajgáz áramlásának időbeli változása

A barometrikus radonpumpa azáltal hat a talajok radonkibocsátására, hogy gázmozgást idéz elő a talajban, amely szállítja a radont. (Gázmozgás hiányában az egyedüli transzportmechanizmus a molekuláris diffúzió.) Az atmoszférikus légnyomás változásainak a talajgáz áramlási sebességére való hatását sikerült közvetlenül is megfigyelnünk és megmérnünk. Mátraderesken mélységi eredetű, főleg szén-dioxidból álló mofettagáz szivárog a talajból (Vásárhelyi et al., [12]). A falu határában van egy 20 méter mélységű kutatófúrás, amely csak kb. 5 m mélységig bélelt. A talajvízszint a felszíntől mérve kb. 13 méter mélyen helyezkedik el. A fúrásból időben változó hozamú gáz áramlik ki, amelynek hozamát egy háztartásokban használt kétkamrás mechanikus gázórával mértük. A gázórához egy elektronikus adatgyűjtő berendezést csatlakoztattunk, amely a gázóra forgórészére rögzített mágneskapcsoló által keltett impulzusokat számolta meghatározott mintavételezési (esetünkben 10 perces) ideig. A mérések szerint a kút gázhozamát az atmoszférikus légnyomás változásai modulálják. Modellszámításokat végeztünk a talajgáz telítetlen zónában való áramlására peremfeltételként a mért atmoszférikus légnyomás időbeli változását használva. Az eredményeket összevetettük a mérésekkel (2. ábra), és azt találtuk, hogy a modellszámítások igen jól leírják a megfigyelt gázhozam változásokat.

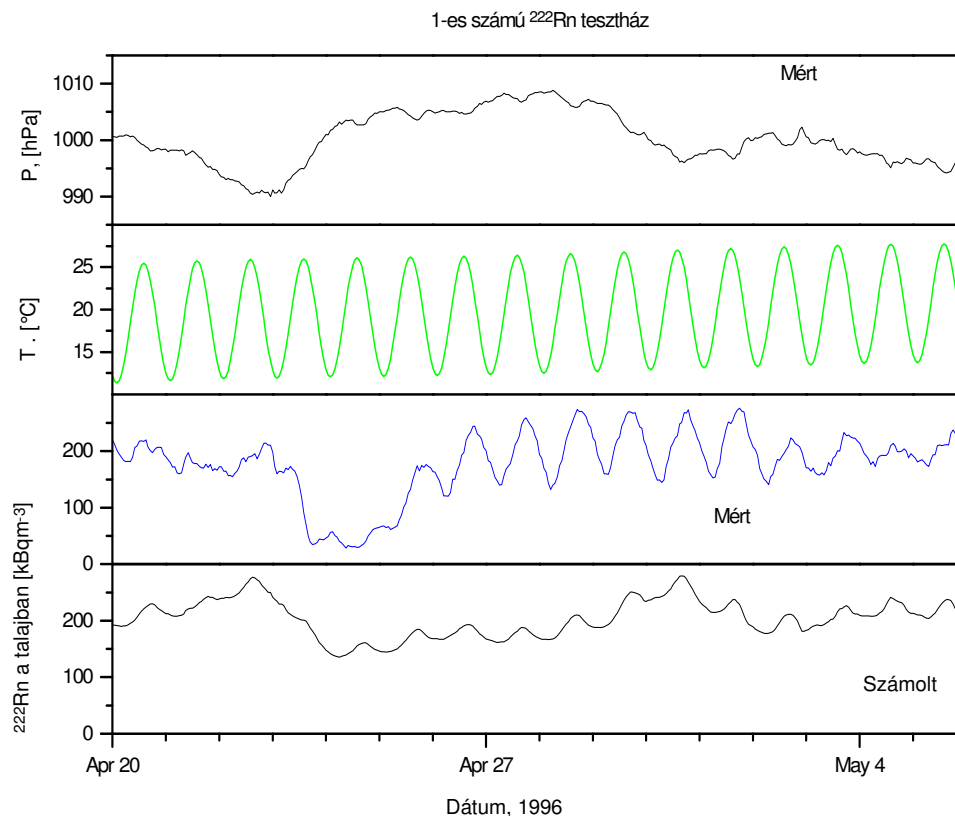
Igen figyelemre méltó azonban, hogy a gázhozam hirtelen megnövekedését (1995. 07. 17-én) a mért idősorban a modellszámítások nem mutatják. Ezt a növekedést egy kb. 1 óra alatt lehullott 60 mm-es eső okozta, ami a modellszámításban nincs benne. Hasonló módon gondolják ilyenfajta mérési adatsorok földrengés-előrejelzésre való használatát is. A megfelelően részletes modellszámításokkal nem magyarázható „jeleket” geodinamikai változások is okozhatják, amelyek akár a földrengések kipattanása előtt is jelentkezhetnek. Már egy néhány perces megbízható előrejelzési lehetőségnek is igen nagy jelentősége lenne, sajnos az eddigi vizsgálatok azonban még nem teszik ezt lehetővé.



2. ábra. A nyomástér és a mofettagázok áramlási iránya a telítetlen zónában egy gáznyerő kút környezetében. A számolt gázhozam összehasonlítása a mátradereskei I-es fúrás mért gázhozamával. A gázhozam hirtelen megnövekedését a mért idősorban 1995. 07. 17-én egy kb. 60 mm-es eső okozta. Ez nincs benne a modellszámításban.

A talajgáz radontartalmának időbeli változása

A talajgáz ^{222}Rn tartalmának gyors időbeli változásait figyeltük meg egy mátradereskei lakóház melletti talajban félvezető detektoros radonmérővel végzett radonméréseknél. Az idősor Fourier spektrum analízisével bizonyítottuk, hogy a félnapos változások nem kapcsolatosak az árapály jelenséggel, hanem az atmoszférikus nyomás (szintén nem árapály eredetű) hasonló periódusú változásával hozhatók összefüggésbe (Vásárhelyi *et al.*, [12]).

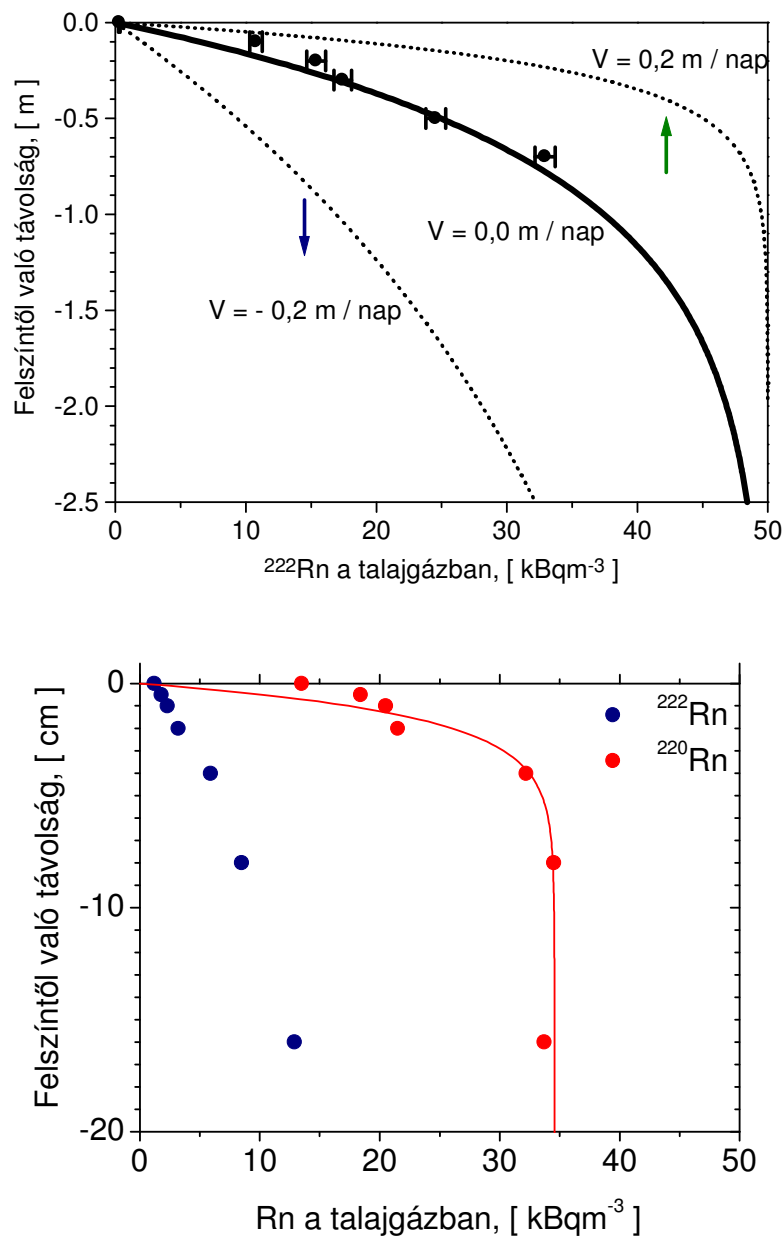


3. ábra. A talajgáz radontartalmára vonatkozó modellszámítás ellenőrzése egy mátraderecskei lakóház melletti talajban Dataqua félvezető detektoros radonmérővel végzett méréssel

A modellszámításokban a talajgáz áramlási terének kiszámítása után meghatároztuk a radonkoncentráció térbeli és időbeli változásait is a talajban. A számításokhoz használt paraméterek értékét, ahol csak lehetett a mérésekből vettük. Peremfeltételként a felszínen időben változó mért nyomás és hőmérséklet adatokat használtuk. Figyelembe vettük a hőtranszportot is, és a talajvíztükörnél állandó geogáz feláramlással számoltunk. A mért és számolt ^{222}Rn görbék hasonlítanak, de a napi változás dinamikája a mért idősorban jóval nagyobb, mint a számoltéban. Úgy tűnik modellünk elég jól képes leírni az atmoszférikus nyomás hatására bekövetkező változásokat, de a hőmérsékleti hatásokkal kevésbé sikeresen birkózik meg.

A talajgáz radontartalmának mélység szerinti változása

Maratottonyom-detektoros módszerrel mértük a talajgáz (2 hetes időszakra vonatkozó átlagos) radontartalmának mélység szerinti változását (4. ábra). Alapesetben a talajgáz radontartalma a diffúziós profil szerint kellene változzon a mélységgel. A mérési eredmények szerint a diffúziós profilhoz képest a felszín közelében nagyobb, a mélyebb rétegekben viszont kisebb a radon aktivitáskoncentráció annál, mint ami a diffúziós profilból következne.



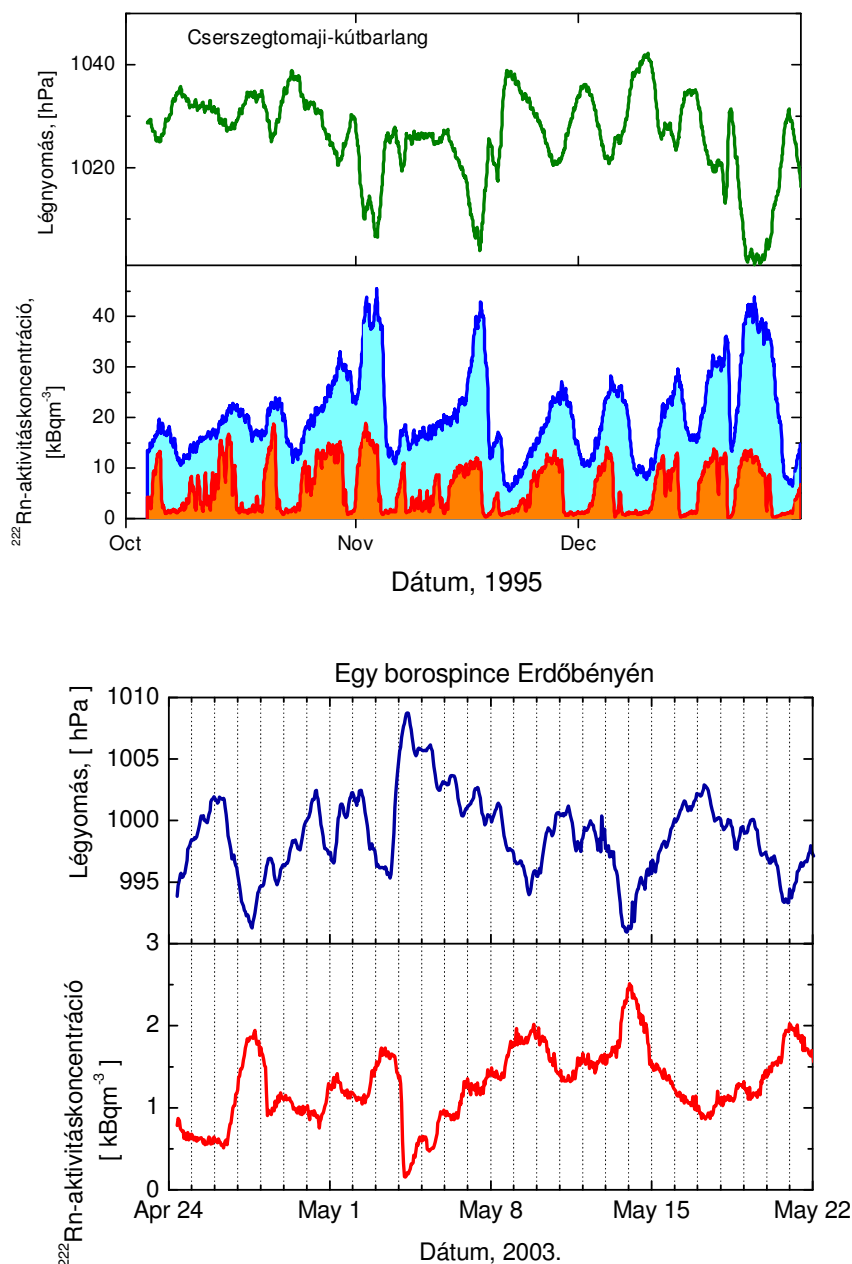
4. ábra. A talajgázban mért ^{222}Rn - és ^{220}Rn -aktivitáskoncentráció mélység szerint változása különböző modellszámítási eredményekkel összevetve.

Ez a fajta profilváltozás viszont jól értelmezhető a barometrikus pumpa hatásának figyelembe vételével. Amennyiben lefelé, vagy felfelé irányuló gázáramlás is van, akkor ez a diffúziós-profil megnyúlik, vagy összenyomódik (4. ábra bal oldala). A radon diffúziós árama ugyanolyan nagyságú felfelé való talajgáz-áramlásnál nagyobb mértékben nő meg, mint amennyire lefelé irányuló áramlásnál lecsökken. Összességében a barometrikus pumpa hatása mintegy kétszeresére képes megnövelni a talaj radonkibocsátását.

A légtér radontartalmának időbeli változása barlangokban és borospincékben

A légnyomásváltozás által barlangi és borospincei levegő légtérében előidézett ^{222}Rn -aktivitáskoncentráció változásokra igen jó példa a Cserszegtomaji-kútbarlang, és például egy erdőbényei borospince esete (5. ábra). Nyomásnövekedéskor a beáramló felszíni friss levegő a

bejárat közelében felhígítja a radonban dús levegőt. Ez a hatás a bejáratától távolodva egyre kisebb.



5. ábra. Az atmoszferikus légnyomás és a ^{222}Rn -aktivitáskonzentráció időbeli változása a felszínnel csak egy kb. 50 méteres kúton keresztül kapcsolatban lévő, de egyébként nagyjából vízszintes járatrendszerrel rendelkező Cserszegtomaji-kútbarlangban. A két ^{222}Rn -aktivitáskonzentráció mérési adatsor közül a narancssárga színű a kútból nyíló bejáratához közel, a kék színű pedig távolabb helyezkedett el.

Egy hajósi borospincében mért és modellszámításokkal kapott radon idősorok összehasonlítása azt mutatta, hogy a modellszámítás ugyan jól adja vissza a ^{222}Rn -aktivitáskonzentráció változás irányát, ugyanakkor sem a ^{222}Rn -aktivitáskonzentráció szintje, sem a változás dinamikáját nem írja le megfelelően (Györfi T. és Csige I., [4]). Ez a számolás is arra hívja fel a figyelmet, hogy a barometrikus radonpumpa ebben a modellben nem eléggé hatékony a megfigyelt változások dinamikájának az értelmezésére. Nielson és mtsi. [7] kimutatták

azonban, hogy repedezett porózus közegekben a barometrikus pumpa hatása akár egy nagyságrenddel is nagyobb lehet, mint repedések nélküli befoglaló közet esetén. Ahhoz hasonló a helyzet, mint a 2. ábrán látható kút esetében. A repedések mentén a gáz áramlása sokkal intenzívebb, mint a közetmátrixban, és az ezeken keresztül történő radonkibocsátás sokkal nagyobb, mint ami repedés nélkül lenne. Ha a felületen sok ilyen repedés található, akkor a barometrikus radonpumpa hatása főleg ezeken keresztül érvényesül, és az átlagos kibocsátás akár egy nagyságrenddel is nagyobb lehet a repedések nélküli kibocsátáshoz képest.

IRODALOM

- [1] Andersen C. E., Albarracín D., Csige I., van der Graaf E. R., Jiránek M., Rehs B. Svoboda Z., Toro L. (1999) ERRICCA radon model intercomparison exercise. RISO National Laboratory, POB 49, DK-4000 Roskilde, Denmark, April, 1999. pp. 1-20
- [2] Clever H. L. ed. (1979) Solubility data series 2, Pergamon Press, 227-234
- [3] Csige I. and Csegzi S. (2001) The Radamon radon detector and an example of application. Radiation Measurements, 34(1-6), pp. 437-440.
- [4] Györfi T., Csige I. (2009) Az atmoszférikus légnyomás változásainak hatása egy borpince légterében lévő ^{222}Rn -aktivitáskoncentrációra. Sugárvédelem, 2, pp. 44-49.
- [5] Miles J. C. H., Algar R. A., Howarth C. B., Hubbard L. M., Risica S., Kies A. and Poffijn A. (1996) Results of the 1995 European Commission intercomparison of passive radon detectors. Final Report. EUR 16949, Luxemburg.
- [6] Nielson K. K., Rogers V. C., Rogers V. and Holt R. B. (1994) The RAETRAD model of radon generation and transport from soils into slab-on-grade houses. Health Phys. 67, pp. 363-377.
- [7] Nielson, R.H., Peterson E. W., Lie K. H., Burkhard N. R., Hearst J. R., 1991. Atmospheric pumping: a mechanism causing vertical transport of contaminated gases through fractured permeable media. Journal of Geophysical Research, 96, 21933-21948.
- [8] Pershagen, G.; Akerblom, G.; Axelsson, O.; Clavensjö, B.; Damber, L.; Desai, G.; Enflo, A.; Lagarde, F.; Mellander, H.; Svartengren, M.; Swedjemarm, G. A. (1994) Residential radon and lung cancer in Sweden. New England Journal of Medicine, 330, pp. 159-164.
- [9] Rogers, V. C.; Nielson, K. K. (1991) Multiphase radon generation and transport in porous materials. Health Phys. 60(6), pp. 807-815.
- [10] UNSCEAR 2006 Report. Effects of Ionizing Radiation. United Nations sales publications E.08. IX.6 (2008) and E.09.IX.5 (2009). United Nations, New York.
- [11] Várhegyi A., Hakl J. (1994) A silicon sensor based radon monitoring device and its use in environmental geophysics. Geophysical Transactions, 39, pp. 289-295.
- [12] Vászárhelyi A., Hunyadi I., Csige I., Hakl J., Hertelendi E., Borossay J. and Torkos K. (1997) Radon enriched deep earth-gas upflow in a seismically active inhabited area. 3rd Int. Col. on Rare Gas Geochem. Dec. 10-14, 1996. In: Rare Gas Geochemistry. Applications in Earth and Environmental Sciences. Ed.: H. S. Virk. Armitsar, Guru Nanak Dev University. pp. 221-238.
- [13] Whysall K., Miles J. C. H. and Olast M. (1996) Results of the 1991 CEC intercomparison of passive radon detectors. Final Report. EUR 15156, Luxemburg.