

BARLANGI KÖZETEK RADON EXHALÁCIÓJA¹

DEZSŐ ZOLTÁN² - HAKL JÓZSEF³ - MOLNÁR LAJOS⁴

²Debreceni Egyetem TTK-ATOMKI Környezetfizikai Tanszék,
4001 Debrecen Pf. 51. dezsoz@tigris.klte.hu

³MTA ATOMKI, 4001 Debrecen, Pf. 51 jhaki@moon.atomki.hu

⁴HBM ÁEÉÁ Regionális Laboratóriuma, 4002 Debrecen, Pf. 137.
molnarl@indigo2.oai.hu

Abstract: Sources of cave radon have been investigated in the Baradla-cave (Aggtelek, NE Hungary) using active radon detection technique. The exhalation of radon from clay deposits as well as from the limestone bedrock was measured in several experiments using specially designed exhalation chambers. The obtained radon concentration versus time profiles have been fitted to model calculations which were based on simple theoretical considerations on radon diffusion. The results show that under normal climatic conditions in caves, the effective diffusion length of radon in clay is large enough to play a significant role in feeding the cave atmosphere with radon gas. This is further enhanced by the relatively high radium-226 concentration and extremely small grain size of clay minerals. Limestone, in turn showed very weak emanation power which, together with its low radium content, resulted in two orders of magnitude less exhalation rate compared to clay. These results provide a clear evidence that the source of radon in karstic caves is clay deposit.

Bevezető

A barlangokra jellemző magas radonszint valamint ennek elsősorban az évszakos időjárással összefüggő jellegzetes változása meglehetősen régóta ismert tény. A radon, mint a levegő nyomjelzője fontos helyet foglal el a barlangi klímavizsgálatok eszköztárában (HAKL J. 1997), segítségével még a barlangi szerkezet kutatása is lehetséges (MOLNÁR L. 2000). Az egyes szerzők a barlangi radon forrását az alapkőzetben és a barlangi üledékekben egyaránt jelenlévő uránnal hozzák összefüggésbe. Nazaroff ide vonatkozó kompilációja szerint, pl. a mészkő átlagos rádium-226 tartalma 25 Bq/kg (NAZAROFF W. et al 1988), ami nagyjából megegyezik a talajokban erre az izotópra számos helyen és szerző által talált értékkel (UNSCEAR 1988). Talán ez a véletlen egybeesés az oka, hogy a forrás kísérleti vizsgálatával foglalkozó szakirodalom – legalábbis a barlangok viszonylatában – kifejezetten szegényes.

A szilárd mátrixban található rádiumból, annak elbomlása pillanatában keletkező radonnak diffúzió vagy áramlás révén kell kijutnia a kőzetből a barlang légterébe. A diffúziós állandó szilárd anyagban (a tömör szemcsé-

¹ Készült a 023181 sz. OTKA, a 0146/1999 sz. MKM valamint a Karszt- és Barlang Alapítvány támogatásával

ben) azonban $< 10^{-32} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$, azaz a radon onnan nem tud kijutni. Ha a kőzet porózus, akkor az ilyen anyagra érvényes 10^{-6} - $10^{-8} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ effektív diffúziós állandó mellett már $\sim 20 \text{ cm}$ megtételére is van lehetőség. Ha megfelelő nyomásgradiens is fellép az adott helyen, akkor áramlás révén még mélyebb rétegek is hozzájárulhatnak a radon koncentráció kialakításához. Michel szerint a viszonylag tömör barlangi üledékek, mint pl. az agyag, kis porozitásuk miatt a barlang radon háztartásához csak kevés járulékot adhatnak (MICHEL J. 1987). Ezzel összhangban látszik lenni Burkett kísérleti eredménye, amely szerint az agyag radon exhalációjával nem volt magyarázható a vizsgált barlangban mért radonszint (BURKETT C. 1993). Valószínűleg ezek a szakirodalmi adatok is hozzájárultak ahhoz, hogy barlangi környezetben forrásként az alapkőzetet tekintik meghatározónak, s erre építve próbálnak elméleti magyarázatot adni az egyes barlangokban tapasztalt radon koncentrációk kialakulására, ezzel is igyekezvén alátámasztani a barlangi klímával kapcsolatban tett megállapítások helyességét (GÉCZY G. 1988).

Nyilvánvaló, hogy egy ilyen elképzelésben meghatározó szerepet kap a kőzet repedezettsége, s az áramlás a felszín és a barlangi tér közötti légcseré formájában is jelentkezhet. Tény, hogy karsztos területen a kőzet igen jó vízvezető, s egyebek között épp ennek köszönhető a térszín alatt húzódó barlangok gazdag formakincse. E karsztvíz azonban jelentősen befolyásolja a radon mozgását a repedésekben, elsősorban is segítve a radonnak a pórusterbe való bejutását (TANNER A. 1980). Másrészt azonban a jelentősebb víztartalom az exhaláció komoly gátló tényezőjévé válik, ugyanis a radon viszonylag jól oldódik vízben, a diffúziós hossz pedig kb. egy nagyságrenddel kisebb, mint porózus kőzetben. Fentiek alapján az is várható, hogy a csapadékviszonyok erősen befolyásolják a barlangi radonszintet. A tapasztalat azonban ezt az elvárást nem igazolja. Az elfogadott elmélet alapján az is meglepő, hogy a barlangi terekre jellemző, elég szűk határok között mozgó üregfelület/térfogat arány és az alacsony lég-csere ellenére a mért radon koncentrációk igen tág határok közé esnek.

Nagyszámú, hazai barlangokból gyűjtött különféle kőzet természetes radioaktivitásának vizsgálata alapján nemrégiben arra az eredményre jutottunk, hogy a mészkő radioaktivitása, s ezzel rádium tartalma is elenyészően kicsi az üledék döntő hányadát adó agyagéhoz képest (DEZSŐ Z. 2000). E hegységalkotó kőzet diagenézise ismeretében ez egyébként nem is meglepő. Ez, valamint a fenti tények alapos indokul szolgáltak arra, hogy a legfontosabb barlangi kőzeteket a radon forrása szempontjából részletes kísérleti vizsgálat alá vessük. Az alábbiakban ezek első eredményeiről számolunk be. Az *in situ* mérések helyszíne az aggteleki *Baradla-barlang* volt, ahol az ilyen vizsgálatokhoz szükséges technikai feltételek adottak voltak.

Kísérleti módszerek és eredmények

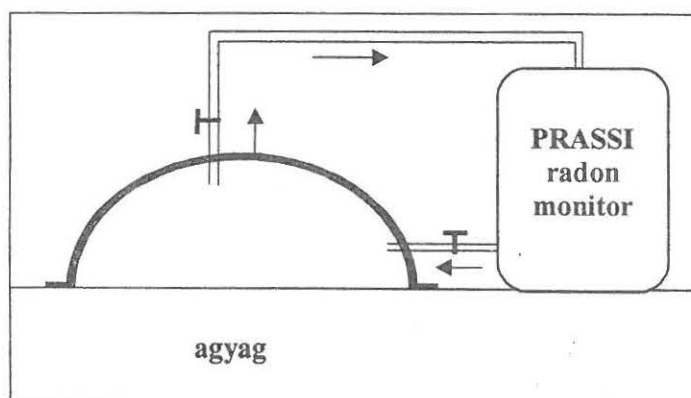
Egy kőzet radon exhalációján annak atmoszférával érintkező felület-egységén az időegység alatt kijutó radon aktivitást értjük. Ennek SI egysége $\text{Bq/m}^2\text{s}$. Ez a fluxussűrűség jellegű mennyiség a forráserősség mértékét fejezi ki. Ezt elsődlegesen a kőzet rádium tartalma szabja meg. Az exhaláció hajtóereje az a koncentráció különbség, amely a környező levegő és a pórus-tér között fennáll. Ez nyilvánvalóan kiegyenlítődni igyekszik, azonban a pórusok és az atmoszféra térfogata közötti sok nagyságrendnyi különbség valamint a radon véges életideje miatt ez sohasem következik be. A rádiumból képződő radonnak ráadásul csak egy része jut be a pórustérbe. Ezt a hányadot az ún. emanációs tényezővel fejezzük ki, aminek értéke 0-1 közé esik. Az emanációs képesség, pontosan nem meghatározható módon, a rádiumnak a szemcsében való elhelyezkedésére utal, s azt mutatja meg, hogy a rádium tartalom milyen hányadban járul hozzá a pórustér radon koncentrációjához.

Az exhalációképesség kísérleti meghatározására sokféle módszert dolgoztak ki (WILKENING M. 1990). A legáltalánosabb és általunk is használt az ún. akkumulációs eljárás. A vizsgálandó kőzet felületét egy alkalmas kiképzésű, radonra át nem eresztő edénnyel légmentesen lezárjuk, s az itt kialakuló radon koncentrációt mérjük az idő függvényében. Könnyen belátható, hogy ez a t időnek egy $[1-\exp(-kt)]$ szerint változó függvénye lesz. Ha a rendszer teljesen zárt, akkor a telítési érték egyértelmű függvénye a pórustérben uralkodó radon koncentrációnak (és a mérési geometriának). Az elérési időt a radon felezési ideje szabja meg, s így a telítési szint elvileg kb. 30 nap alatt alakul ki. Amennyiben a koncentráció ennél hamarabb állandóvá válik, akkor az a kísérleti rendszer tökéletlenségére utal.

Az általunk használt *in situ* mérési elrendezés az 1. ábrán látható. A radon mérésére egy PRASSI típusú, periodikus üzemmódban (ún. grab sampling) is működtethető készüléket használtunk. A 15 perces mintavétel (ekkor a levegő az ábrán nyilakkal jelzett irányban áramlik) után 3 órát vártunk, amíg kialakult a radioaktív egyensúly a radon és rövid életidejű leánytermékei között. (Erre a korrekt radon mérés miatt van szükség, ugyanis a detektor a bomlástermékek által kibocsátott alfa részecskéket is számlálja.) Az aktuális koncentráció meghatározására 1 óra mérési időt használtunk. A Róka-ág Labor-termében az agyag radon exhalációját közel két napon keresztül vizsgáltuk a fenti időrezsímben.

A mérési eredményeket a 2. ábrán a nyitott körök jelzik. Látható, hogy az alkalmazott felület/térfogat aránynál már néhány óra múlva könnyen mérhető magas radon koncentráció alakult ki, s az időben az elvárt módon emelkedett. A kísérlet ideje alatt a Labor-teremben egy AlphaGuard típusú, a

PRASSI-val összekalibrált készüléssel párhuzamosan is mértük a radon koncentrációját. A tapasztalat szerint ez mindvégig állandó, átlagosan (580 ± 20) Bq/m³ volt. A kísérleti adatokra illesztett görbe meredekségéből a lezárt felület és a búra térfogatának ismeretében az agyag exhalációja ki-számítható. A fluxus értékére 6.29 mBq/m²s adódott.



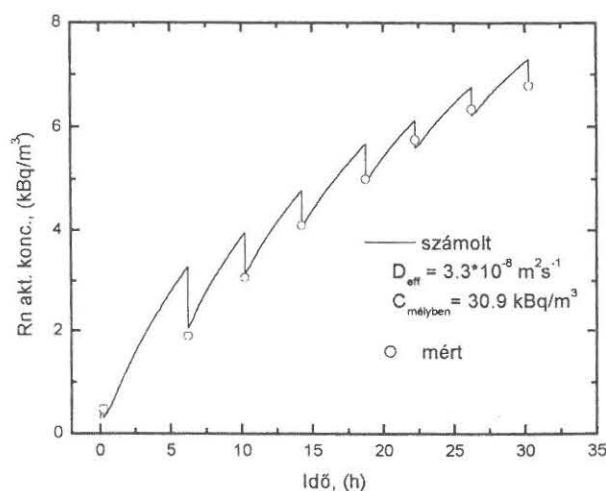
1. ábra. Exhalációs mérőberendezés vázlata
Fig. 1. Sketch of exhalation experimental set up

Mivel az alkalmazott geometria igen egyszerű volt, a fenti kísérletet modellszámítással is szimuláltuk. Ebből a radon ún. effektív diffúziós állandója és a telítési radon koncentráció számolható. Az agyagban a radon koncentráció időbeli változását az alábbi parciális differenciálegyenlet írja le:

$$\partial c / \partial t = \text{div}(D_{\text{eff}} * \text{grad}(c)) - \lambda c + \lambda c_{\infty},$$

ahol a jobb oldal első tagja a diffúziót, a második a radioaktív bomlást, a harmadik pedig a radon forrását jellemzi. Hengeres geometriájú modellünkben figyelembe vettük, hogy az edény térfogata a kísérlet során periodikusan változik. Feltételeztük továbbá, hogy az agyag homogén. A parciális differenciálegyenletet az adott kezdeti és peremfeltételek mellett végeelem módszerrel oldottuk meg a mérőedényt és a hozzá csatlakozó 0.5 m sugarú és 0.5 m mély agyagot magába foglaló régióban. Kezdeti feltételként vettük figyelembe, hogy c_k külső koncentráció a fent megadott mért érték és ehhez illesztettünk a z mélység szerint exponenciálisan változó kezdeti értékfeltételt. A régió szélső, ill. alsó peremén a radon fluxusát nullának tekintettük, mert már távol vagyunk a zavart okozó mérőedénytől.

A modellszámítás eredménye az illesztési paraméterekkel együtt látható a 2. ábrán. A számított görbe fűrészfog jellege abból adódik, hogy a két mintavétel közötti időben csak a búra alatt változik a radon koncentrációja, s az összenyitáskor a hirtelen megnőtt térfogat miatt az leesik a két koncentráció érték térfogatokkal súlyozott átlagára. Az elmélet és kísérlet látható módon kitűnő egyezést mutat. A kapott paraméterekkel számolt exhaláció értéke $8.12 \text{ mBq/m}^2\text{s}$. A némileg magasabb érték oka az, hogy az első esetben a mintavétel idején bekövetkező koncentráció-esést az adatok értékelésénél nem vettük korrekcióba, így a valódi meredekséget alul-becsültük. Ez a kis különbség egyébként az ábrán szemmel is észlelhető.



2. ábra. Agyag helyszíni radon exhalációja
Fig. 2. In situ radon exhalation measurement on clay

A fenti kísérletben kapott fluxus adat alacsonyabb, mint az irodalomban a jóval porózusabb talajokra közölt $10\text{-}20 \text{ mBq/m}^2\text{s}$ exhaláció (WILKENING M. 1985), azonban nem olyan kicsi, hogy elhanyagolható lehetne a barlang radonszintje szempontjából. Mivel a Róka-ág a *Baradla-barlang* egy önálló, a fő-ágtól elkülönülő része, elképzelhető, hogy a radon koncentrációját is csak az itt található kőzetek szabják meg. Felmérve az agyag teljes felületét valamint a terem térfogatát, becslést végeztünk a fenti fluxus értékkel a várható radonszintre. Eredményül 800 Bq/m^3 -t kaptunk, ami nincsen ellentmondásban a mért értékkel.

Hasonló *in situ* mérést folytattunk a Baradla fő-ágban a patakmederben lerakódott agyagon is. A körülmények itt nem tették lehetővé az időbeli változás mérését, csak a telítési értéket határoztuk meg két hónapos

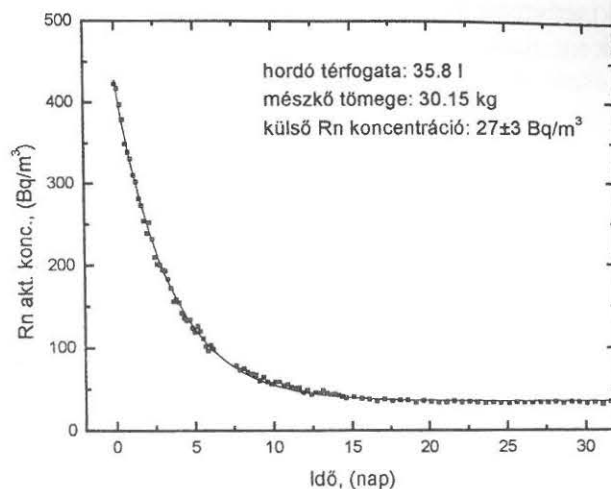
exhalációs idő után. Ezért ebből a kísérletből csak a diffúziós állandó és a c_{∞} lehetséges kombinációira tudunk következtetni, ami a fluxusra egy tartományt ad eredményül. E mérés szerint az árvíz utáni rendkívül vizes agyagban a radon exhalációja $0.9 - 4.8 \text{ mBq/m}^2\text{s}$ között lehet, azaz a fluxus jelentősen kisebb, mint a Róka-ágban volt. E tapasztalat összhangban van azzal a már említett ténnyel, hogy vízben a radon diffúziós állandója kicsi. Nem kizárt, hogy a bevezetőben is hivatkozott Burkett negatív eredménye is a vizsgált agyag nagy nedvességtartalmának rovására írható.

A mészkő radon exhalációját először a Róka-ág Labor-termében, egy leszakadt, kb. 2 m^3 térfogatú tömbön vizsgáltuk a fent már leírt módon és berendezéssel. Az exhalációs edény és az egészen sík törési felület közötti tömítést egy helyben elkészített vizes gél segítségével igyekeztünk biztosítani. Mérhető effektust azonban két napos mérés után sem találtunk, ami egyaránt magyarázható a mészkő repedezettsége miatt fennálló elégtelen zártsággal (kiszellőzött az edény) vagy a mészkő igen alacsony exhalációjával. Ez utóbbi feltételezést ellenőrizendő, a mérést laboratóriumi körülmények között is elvégeztük.

A vizsgálatához egy 35 literes, jól zárható műanyaghordóba 30.15 kg darabos mészkövet tettünk, majd azt még a barlangban lezártuk. A fedélen kiképzett tömített átvezetők segítségével csatlakoztattuk a PRASSI radon monitorhoz és a barlangon belül mértük a már leírt időrezsímben a mérőedénybeli radon koncentrációt az idő függvényében.

Ennek induló értéke a Labor-teremben akkor éppen uralkodó szint, 700 Bq/m^3 volt. Nem kis meglepetésünkre emelkedés helyett a radonszint csökkent és 3 nap múlva már csak 470 Bq/m^3 értéket jelzett a készülék. A radon koncentráció időbeli csökkenésének üteme arra utalt, hogy vagy a mérőrendszer nem teljesen zárt radonra, vagy a mészkő exhalációja pótolja az elbomlott radon egy részét. A két lehetőség természetesen egymás mellett is fennállhatott.

A kérdés eldöntéséhez az összeállított kísérleti berendezést, annak megbontása nélkül kiszállítottuk a felszínre, majd további 1 hónapon át az egyetem laboratóriumában elhelyezve követtük a radonszint alakulását. Már néhány nap múlva látszott, hogy a görbe meredeksége megváltozott, meredeksége nagyobb volt, mint amit a radon bomlási állandója megszab. Bizonyossá vált, hogy a rendszer nem teljesen tömör. A kísérlet utolsó napjaiban a radon koncentráció már gyakorlatilag nem változott, s a külső, laboratóriumban mért értékre, vagy ahhoz nagyon közelire látszott beállni. A teljes kísérleti időre kapott radon koncentráció adatokat a 3. ábra mutatja.



3. ábra: Mészkő radon exhalációja hordóban
 Fig. 3. Radon exhalation of limestone measured in a barrel

A radonszintet befolyásoló összes tényezőt figyelembe véve a mérőedényben a koncentráció időfüggését az alábbi differenciálegyenlettel lehet leírni:

$$dc_M/dt = -\lambda c_M + \gamma(c_K - c_M) + \lambda c_F,$$

ahol a jobb oldal első tagja a radioaktív bomlást, a második tag a rendszer c_K külső koncentrációjú térre való szellőzését jelenti. A harmadik tag a radon mérőedényben belüli forrását írja le, ami jelen esetben a mészkő exhalációjával arányos forrástag. Az egyenletből következik, hogy az edényben belül a radonszint $\exp[-(\lambda + \gamma)t]$ szerint közelít a c_M egyensúlyi koncentrációhoz, így az időállandó mérésével a γ meghatározható. Ezután, mivel $dc_M/dt = 0$ és γ ismert, c_F egyszerűen kiszámítható.

A fentiek szerint meghatározott szellőzési tényezőre $\gamma = 0.1196 \text{ nap}^{-1}$ értéket, egyensúlyi radon koncentrációra pedig $c_M = 32.3 \text{ Bq/m}^3$ -t kaptunk. Mivel a laboratóriumban a radon koncentrációja mérésünk szerint mindössze $27 \pm 3 \text{ Bq/m}^3$ volt, a hordón belüli forrásereőséget a $c_F = 35 \text{ Bq/m}^3$ érték jellemzi. Ez a hordó teljes térfogatára számítva 1.25 Bq forrás aktivitásnak felel meg. Egységnyi tömegű mészkő tehát csak 0.042 Bq radon emanációjára képes. Figyelembe véve a mészkő sűrűségét (2710 kg/m^3), ez 112 Bq/m^3 koncentrációnak felel meg. Az eredmény azt jelenti, hogy egy ilyen kőzetben képződött üregben, ha ott más, radon exhalációra képes anyag nincsen, akkor ennél magasabb radonszint semmiképpen nem alakulhat ki. Ez egyben azt is

jelenti, hogy kísérletünk színhelyén, a Róka-ág Labor-termében a mészkő a radon nyelőjeként funkcionál, az ottani radon-szint kialakításában csak az agyag, ill. légcseré révén más termékből vagy a felszínről származó levegő vesz részt.

Összefoglaló

Az aggteleki *Baradla-barlangban in situ* mérésekkel vizsgáltuk a barlangi radon forrásait. Megállapítottuk, hogy az általában jelentősebb rádium tartalmú agyag a felszíni talajokkal összemérhető mértékben exhalál. Ez nyilvánvalóan annak köszönhető, hogy az igen apró szemcsékből álló kőzet jól emanál, így a pórusterben számottevő radon koncentráció tud kialakulni. Ezt támasztja alá az az eredményünk is, hogy nagy víztartalom esetén az exhaláció erőteljesen korlátozott, mivel ilyen esetben lecsökken az effektív diffúziós állandó. Ezzel szemben a mészkő alig mutatott hajlamot az exhalációra. Mivel ennek a kőzetnek a rádium tartalma igen alacsony, még nagy emanáló képesség esetén sem tudná felülmúlni az agyag exhalációját.

Úgy tűnik tehát, hogy a barlangi radon forrása az agyag, az alapkőzet ezzel szemben inkább nyelőként funkcionál. Jóllehet üledékként az agyag szinte mindenhol jelen van, forrásként igazán ott szerepel, ahol mennyisége számottevő. Mivel ilyen értelemben az agyag eloszlása a barlangban nagyon inhomogén, ez egyben azt is jelenti, hogy a radon forrása lokalizálható. Ez a tény felhasználható új barlangi részek felderítésére, ill. ismert járatok szellőzésének időbeli vizsgálatára.

IRODALOM

- BURKETT C.* (1993): Radon levels in limestone caves in central Pennsylvania. - B.Sc. Thesis, University Park, Pennsylvania State University, Pa.
- DEZSŐ Z.* (2000): A barlangi radon eredetének vizsgálata, II. Karsztfejlődés Konferencia, Szombathely, 2000. ápr. 13-14, előadás.
- GÉCZY G.-CSIGE I.-SOMOGYI G.* (1988): Air circulation in caves traced by natural radon. - In: Proc. of the 10th Int. Congress of Speleology, Hung. Speleological Society, Budapest, 2, p. 615-617.
- HAKL J.-HUNYADI I.-VÁRHEGYI A.* (1997): Radon monitoring in caves. - In: S.A. Durrani, R. Ilic (szerk.), Radon measurements by etched track detectors. - Applications in Radiation Protection, Earth Sciences and the Environment. World Scientific Publishing Co., Singapore, p. 261-283.
- MICHEL J.* (1987): Sources. In: : C.R. Cothorn, J.E. Smith Jr. (szerk.), Environmental radon. Plenum Press, New York, p. 98-108.

- MOLNÁR L.-DEZSŐ Z.* (2000): Barlangi terek kutatása radon segítségével - Karsztfejlődés V., BDF Természetföldrajzi Tanszék, Szombathely, p. 283-291.
- NAZAROFF W.-NERO A.* (1988): Radon and its decay products in indoor air, John Wiley and Sons, New York, p. 72.
- TANNER A.* (1980): Radon mitigation in the ground: a supplementary review - In: Natural Radiation Environment III. Technical Information Center, U.S. Department of Energy, Springfield, VA, p. 5-56.
- UNSCEAR* (1988): Sources, effects and risks of ionizing radiation, New York, United Nations.
- WILKENING M.* (1985): Radon transport in soil and its relation to indoor radioactivity, - Sci. Total Environ., 45, p. 219-226.
- WILKENING M.* (1990): Radon in the Environment. - Elsevier, Amsterdam, p. 50-53.

