

A BARLANGI AGYAGOS KITÖLTÉS RADON VISZONYAINAK VIZSGÁLATA A BARADLA-BARLANG EGY PONTJÁN

PAPP BOTOND¹ -DEÁK FERENC¹ -HORVÁTH ÁKOS¹ -KISS ÁDÁM,¹ -
VID GÁBOR²

¹Eötvös Loránd Tudományegyetem Atomfizikai Tanszék
1117 Budapest, Pázmány Péter sétány 1/A pappboti@ludens.elte.hu
²egyéni kutató, vidg@interware.hu

Abstract: In this work, we propose a new method that concludes some properties of different geological formations. In our study, the equilibrium radon-level has been determined under special circumstances in a closed borehole some meters under the surface. The hole was be free of radon at the start of measurement and, hereafter closed to environmental air exchange. The time dependence of the radon concentration was determined by RAD7 radon monitor. The measured time dependence provides information on the average uranium content of the surrounding geological environment, as well as for its diffusion properties – according to our preliminary results – on a reproducible way. On the other hand, since, the diffusion phenomena depend to permeability of rocks, we hope to get an effective tool to provide the corresponding geophysical data. Our preliminary measurements were performed in the Baradla cave at Aggtelek, in 2002 summer. The results of measurements show that the diffusion phenomena of radon gas can be well understood by a simple diffusion model using Monte Carlo calculations. According to the present results we propose further development.

Bevezetés

A radon és a toron a földkéregben folyamatosan keletkezik az urán és tórium radioaktív bomlási sorából, mely utóbbiak kis mennyiségben ugyan, de mindenütt jelen vannak a talajban és kőzetekben. Keletkezésükkor, a kőzet vagy talaj szemcséiben a radon atomok egy része a pórusok közti légtérbe vándorol, és innen diffúzióval vagy nyomáskülönbség okozta transzporttal, az atmoszférába kerül.

A radon és a toron migrációja vagy transzportja keletkezésének helyétől, az atmoszférikus levegő vagy a beltéri lakások felé a következő elsődleges faktoroktól függ: a környezet porozitása, a talaj vagy kőzet nedvességtartalma, a talajlevegő és a szabad levegő nyomáskülönbsége, valamint a hőmérséklet. Mint másodlagos faktorokat, amelyek egyes esetekben fontos szerepet játszanak, megemlíjtük: szélsébség, hőmérséklet inverzió okozta áramlások, és a légnyomás gyors változása. Ezen folyamatok megértése lényeges a lakások, illetve földalatti üregek radon szintjeinek meghatározásában (COSMA 1996).

A szilárd anyagban (mátrixban) található rádiumból, annak elbomlása pillanatában keletkező radonnak diffúzió vagy áramlás révén kell kijutnia

a kőzetből a légtérbe. A diffúziós állandó szilárd anyagban (tömör szemcsében) $< 10^{-32} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, azaz a radon onnan nem tud kijutni. Ha a kőzet porózus, akkor az ilyen anyagra érvényes $10^{-6} - 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ effektív diffúziós állandó mellett, már $\sim 20 \text{ cm}$ megtételére is van lehetőség. Ha a megfelelő nyomás-gradiens is fellep az adott helyen, akkor áramlás révén még mélyebb rétegek is hozzájárulhatnak a radon koncentráció kialakulásához (DEZSŐ et al. 2001).

In situ radon koncentráció méréseink 2002-ben végeztük a Baradla barlang egy pontjában, az ún. „München átjáró” előtt, az „ELTE-TTK - 5” nevű mélyfuratban (BURJÁN-VID 2003).

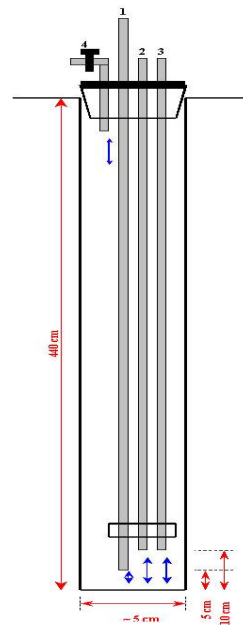
Célunk, hogy meghatározzuk egy zárt barlangi furatban (ahol a meteorológiai viszonyok már nem hatásosak), a radon koncentrációjának telítési szintjét, valamint beálltának idejét, diffúzió útján. Következésképpen, e mérések alapján, egy geológiai képződményen létrehozott zárt üregben felvilágosítást adjunk földtanilag értékes adatokra, mint például a környezet átlagos ^{238}U illetve ^{226}Ra tartalmára, valamint a radon átlagos szabad úthosszára, ami a kőzetek permeabilitásával hozható kapcsolatba.

A mérésekhez szükséges, hogy olyan zárt üreget hozzunk létre, ahol a meteorológiai viszonyok nem befolyásolják a radonkoncentráció értékeit.

Kísérleti berendezés és mérési módszer

A mélyfurat, amelyet az ELTE-TTK Kőzetan és Geokémia Tanszék dolgozói hoztak létre, hengeres geometriájú, mélysége 440 cm , átmérője 5 cm , térfogata $8,64 \text{ dm}^3$.

A furatbeli radon-gáz mintavételére egy csőrendszert használtunk (Furat Levegő Mintavevő = F.L.M.), melyet egy RAD7 (DurrIDGE, USA) típusú félvezető detektoros radon monitorral kapcsolunk össze, a radon időbeli aktivitáskoncentráció változásának mérésére. A mintavevő csőrendszer az 1. ábrán látható. Ez a csőrendszer négy csőből áll, melyek közül az (1)-es számú a szellőztető cső, melyen keresztül radon-mentes sűrített levegőt áramoltatunk be nagynyomáson a furat öblítésére. Ennek



1. ábra. Mintavevő csőrendszer
Figure 1. Sampler collector pipe system

hossza 435 cm. A (2)-es és a (3)-as számú csövek (hosszuk 430 cm) a mintavevő csövek, melyek a RAD7 detektor ki- és bemenetére vannak kapcsolva. Ezeken keresztül történik a mintavétel. Ugyanazt a levegőt cirkuláltatjuk át a detektoron mérés közben, csak újabb radon gáz adódik hozzá, ami a furatban felhalmozódik. A (4)-es számú cső egy csappal lezárható. Ez a túlnyomás levezetésére szolgál, és amelyen keresztül, az öblítés alatt a radon-gázzal telt levegő elhagyja a furatot. A csőrendszer egyik vége egy fordított csonka kúp alakú gumidugón van átengedve, és ez a gumidugó fedi a furatot az ábra szerint. A csőrendszer másik vége össze van fogva egy fémből készült háromszög alakú gyűrűs csatolóval. Félméterenként a csőrendszer celluxal van összefogva, hogy jobban lehessen lemeríteni a furatba.

A fent leírt rendszerrel vizsgáltuk a radon-koncentráció időbeli alakulását.

Méréseink célja vizsgálni egy ilyen fúrásban a radon gáz diffúzióját, és kimérni telítődési szintjének valamint a telítődés beálltának idejét. Jelen tanulmányban leírt mérésünk előtt a fent említett módon ledugóztuk a mélyfúrást. Mérésünk előtt egy öblítést végeztünk a már gumidugóval zárt furatban. A fent leírt csőrendszer (1)-es számú szellőztető csövére egy sűrített levegővel telt palackot illesztettünk. A palackból nagynyomású radontól mentes levegőt eresztünk be a lyukba, 2 bar munkanyomáson (összesen 15 bar). Öblítéskor megnyitottuk a (4)-es számú csapot is, hogy a radon-gázzal telt levegő a csapon keresztül elhagyja a lyukat. Ezen öblítés célja az volt, hogy lecsökkentsük a radon koncentrációt közel 0 Bq/m^3 értékre. Tisztítás után a mért radon koncentráció $371 \pm 217 \text{ Bq/m}^3$ átlag értékre csökkent. Ez már viszonylag elegendően alacsony érték ahhoz, hogy a detektorral figyeljük a radon gáz diffúzióját a furatban. Ugyancsak mérés előtt, szükségünk volt egy kb. 30 perces radon mentesítő detektor-tisztítást végezni, a radon és alfa bomló leányelemeinek (^{218}Po és ^{214}Po) kiürítésére a detektor légteréből melyek, mint fémek felhalmozódnak ebben, a radon gáz bomlása során.

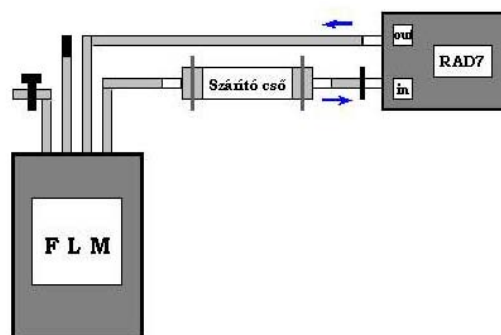
Ezek után az (1)-es számú szellőztető csövet és a (4)-es számú csapot lezártuk, ahhoz hogy a rendszerünk hermetikusan zárt legyen, és kizárólag a furat levegő csak a RAD7 radon monitorral legyen kapcsolatban.

A következőkben így meg tudtuk mérni a radon gáz barlangi üledékből történő diffúzióját a fúrásban. Mivel a fúrásban a levegő relatív nedveségtartalma viszonylag nagy volt, (~ 50%) ezért méréskor használnunk kellett egy kis szárító csövet, melyben szárítóként 30 gramm CaSO_4 szemcsék voltak. Ez megköti a levegő páráját, amely így nem jut be a detektorba. A páratartalom csökkentésével a detektor érzékenysége növekszik. Ily módon a páratartalmat korlátozni tudtuk minimális értékre (~ 2%). Ezt, a RAD7

egy beépített páratartalom mérővel méri, amely mint mérési adat, minden mérés után a készülék memóriájában mentődik, és innen olvasható vissza.

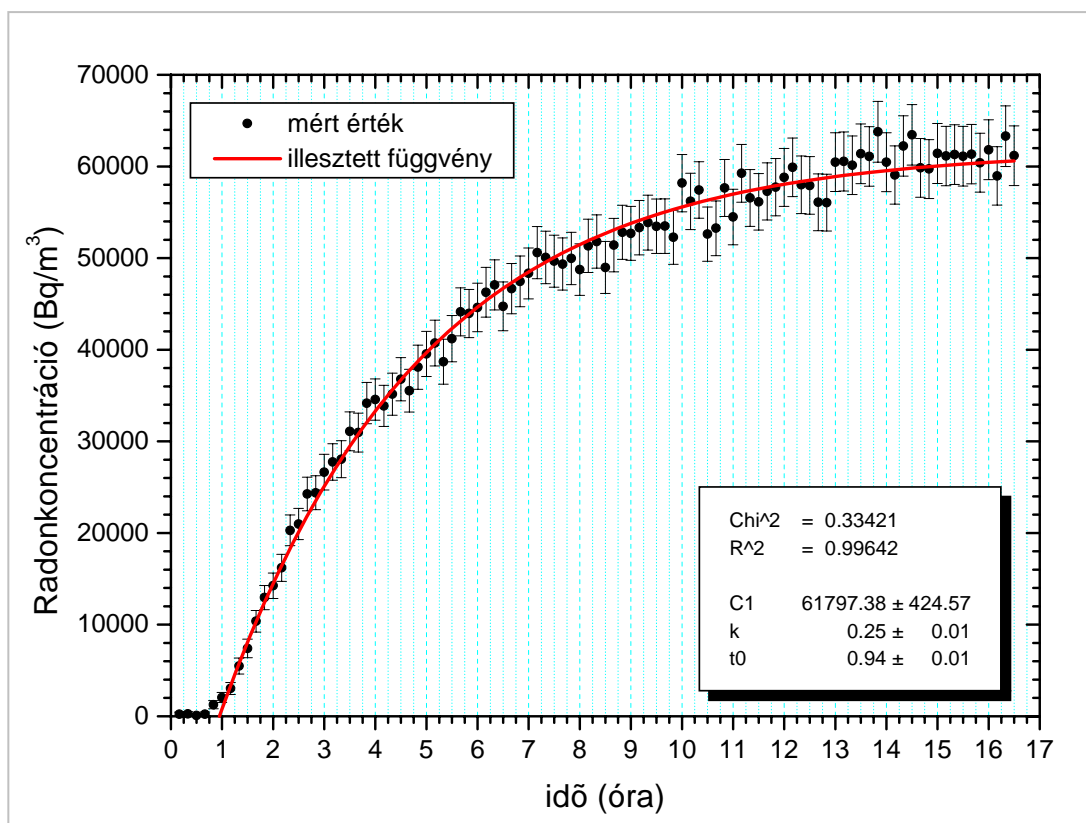
Furat- és detektortisztítás után, kb. 16,5 órán keresztül, 10 perces ciklusidővel méréseket végeztünk a radon aktivitáskoncentráció időbeli változásának meghatározására.

Kísérleti berendezésünk blokk vázolata a 2. ábrán látható, valamint az időben kialakuló radon aktivitáskoncentráció a 3. ábrán.



2. ábra. Kísérleti berendezés blokk vázolata

Figure 2. Block scheme of the experimental installation



3. ábra. A radon aktivitáskoncentrációjának időbeli változása
Figure 3. Time dependent variation of radon concentration.

A mérési pontokra egy exponenciális próbafüggvényt illesztünk, hogy meghatározzuk az egyensúlyi radon koncentráció értékét. Az illesztést egy adott $2 \cdot \sigma$ -hoz tartozó hibaintervallumon belül végeztük. Ez az érték a környező közeg és a furat radon koncentráció egyensúlyának beálltakor alakul ki. Az illesztett függvény a következő alakú:

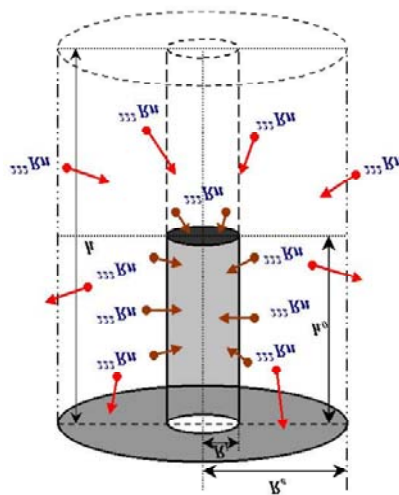
$$C = C_{\infty} \cdot [1 - e^{-k \cdot (t - t_0)}]$$

ahol, C = radon aktivitáskoncentráció, C_{∞} = radon aktivitáskoncentráció telítési értéke, k = állandó, t = mérési idő és t_0 = kezdeti időeltolódás.

A mérés elején a tapasztalat az, hogy a radon aktivitáskoncentrációja csökkenést mutat az első 3 mérési pontban, 30 perc ideig. Ez az ok, a detektor kevés ideig való tisztításának eredménye. Ezért az illesztést csak a 7-ik mérési pontból kezdtük. Ennek magyarázata a jó illeszkedés a mérési pontokhoz az ábrázolt görbe elején, $2 \cdot \sigma$ -hoz tartozó hibaintervallumon belül.

Modellezés

Mérésünk radon aktivitáskoncentráció eredményeit összehasonlítottuk egy Monte Carlo szimuláció eredményével, melyet egy Fortran nyelven írt szoftver számolt ki. A Monte Carlo szimuláció alapján a furatot egy véges dimenziójú hengeres geometriában képzeltük el. Ez a henger be van helyezve egy végtelennek tekinthető külső hengerbe, amely a környező közegot jelenti (4. ábra). A szimuláció kezdetben 200.000 pontszerűnek tekinthető részecskével indul, amelyek a külső hengerben helyezkednek el. Miután a külső henger teljes kitöltésében egyenletesen megoszlottak a részecskék (kialakult egy egyensúlyi helyzet), elindul a részecskék diffúziója úgy, hogy ezek lépésről lépésre a belső hengerbe jutnak. Megjegyezzük, hogy ha a külső hengerből kifelé vándorolnak részecskék, akkor ezek pótlására a program véletlenszerűen



4. ábra. A furat és közeg hengeres elrendezése

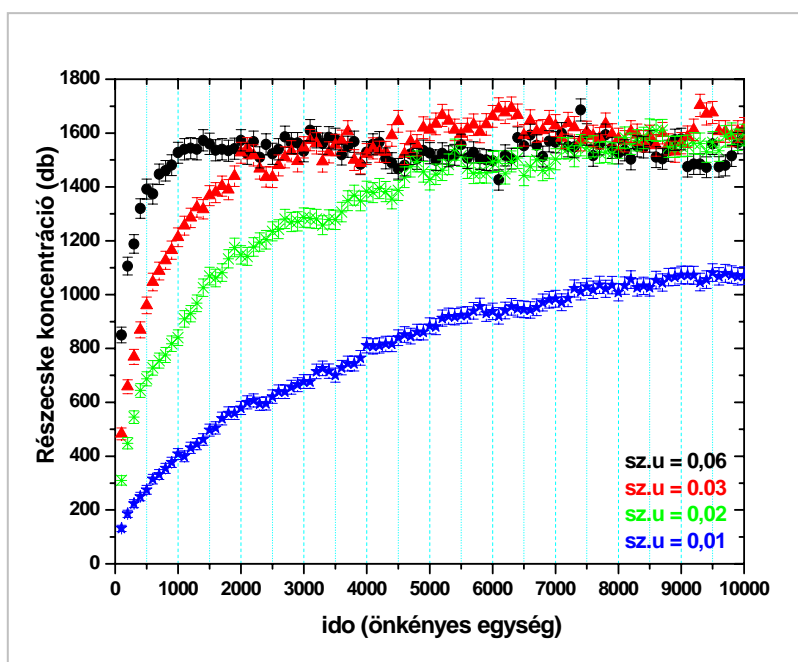
Figure 4. Cylindrical configuration of the bore hole and rocks

generál részecskéket. Feltételezzük, hogy a lyuk térfogatának többszörösével történt sűrített levegő átáramoltatása a lyuk egy környezetéből (esetünkben 40 szabad úthossznyi részből is), kivonja a radont.

A szimulációban a bemenő adatok két csoportra oszthatók, melyek a következők:

- a.) *külső henger magassága* $\geq 2 \cdot$ *belső henger magassága*;
belső henger sugara = *külső henger sugara* / 2;
- b.) *szabad úthossz* = (0,001 ÷ 0,7);
szabad úthossz száma ;
radon részecskék száma = 200.000.

Megjegyezzük, hogy a szimulációban a radon radioaktív volta nincs belefoglalva. A diffúziót leíró programból még hiányzik a radon 3,8 napos felezési idővel való bomlása. Feltételezzük, hogy a radon koncentráció a 4,5 m mélységben nem változik annyira, mert állandóan keletkezik is a részecskeszám állandó tartásával, és a 17 óra alatti kis részarány lebomlása miatt a bomlás figyelembevétele csak néhány százalékkal változtatná meg a kapott eredményeket.

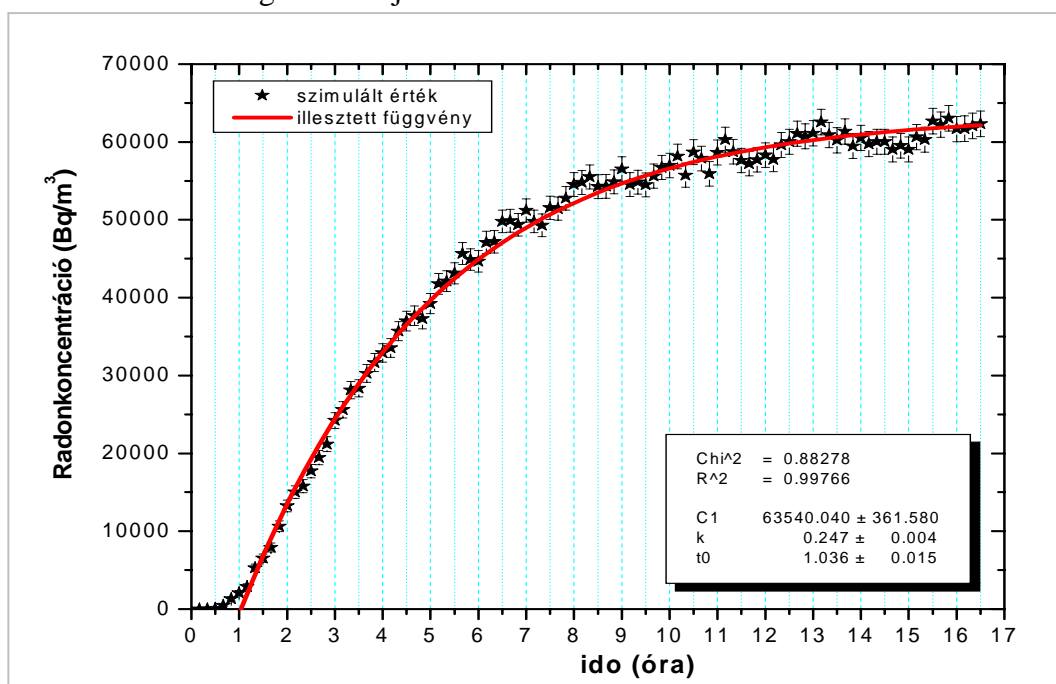


5. ábra. Különböző szabad úthossz értékekre a koncentráció időbeli változása a Monte Carlo szimulációból
 Figure 5. The time dependent variation of concentration at different values of free mean path from Monte Carlo simulations

A szimulációból kapott eredmények a külső hengerből a belső hengerbe diffundáló részecskék száma és ezek statisztikus hibája. Ezek az értékek az idő függvényében vannak, melyeket úgy választottuk meg, hogy a 100 mérési pontra optimális illesztést adjon. A szimuláció érdemi paramétereit a részecskék szabad úthossza, és a telítési koncentráció.

Változó szabad úthossz értékre azt kapjuk, hogy minél jobban csökkentjük a szimulációban a szabad úthossz értékét, annál lassabban alakul ki a telítési egyensúlyi állapot. Ezt mutatja be az 5. ábra, melyben hosszú idő alatt (10.000 önkényes időegység) látjuk a különböző szabad úthossznál kapott koncentráció-eloszlást.

A Monte-Carlo szimuláció eredményeinek összehasonlítását a 3. ábrán bemutatott mért adatokkal a 6. ábra mutatja be. Ebből jól látszik, hogy a mérési pontok megegyeznek a szimulációs pontokkal egy adott statisztikus hibán belül. A szimulációs pontokra illesztett görbe alakja hasonló a 3. ábrán illesztett görbe alakjához.



6. ábra. Monte Carlo szimuláció
Figure 6. Monte Carlo simulation

A szimulációnál mind a koncentráció, mind pedig az idő normálható a mért koncentráció és időintervallumra.

Az ábrán, a Monte-Carlo szimulációban bevitt kezdeti paraméterek a következők: szabad úthossz = 0,035 (sz.u.); szabad úthossz száma = 40 (n.sz.u.); külső henger sugara = 4 (R_e); belső henger sugara = 1 (R_i); külső henger magassága = 8 (h); részecske darab szám = 10.000 (n).

Eredmények és következtetések

A fenn leírt mérésből következik, hogy néhány óras mérés után egy hermetikusan zárt furatban beáll egy egyensúlyi radon-koncentráció, amely kimérhető a leírt kísérleti technika segítségével.

A mérési pontok exponenciális illesztéséből következik, hogy az egyensúly beállta után a radon aktivitáskoncentrációja $61800 \pm 424 \text{ Bq/m}^3$ lesz.

A Monte-Carlo szimuláció minden esetben jól leírja a mérési eredményeket, így az alkalmazott modell jónak tűnik. A különböző mérések közti eltérések arra utalnak, hogy ha a szabad úthossz megváltozik, akkor ennek körülményeit fel kell deríteni ahhoz, hogy valóban hatékony, megbízható módszert kapjunk az adatok geológiai szempontból történő kiértékeléséhez.

Összefoglalás

Az Aggteleki Baradla-barlangban in situ mérésekkel vizsgáltuk a radon feldúsulását egy zárt furatban. Megállapítottuk, hogy egy ilyen zárt furatban óriási radon aktivitáskoncentráció tud kialakulni (több kBq/m^3). Ez a feldúsulás a radon gáz diffúziójának az eredménye.

Elméleti számolások alapján arra jutottunk, hogy méréseink eredményeit jól ellenőrzik a Monte Carlo szimulációs számítások, statisztikus hibán belül.

IRODALOM

COSMA, C.: Radon és a környezetünk - Dacia Könyvkiadó, Kolozsvár, 1996

DEZSŐ Z.-HAKL J.-MOLNÁR L.: Barlangi kőzetek radon exhalációja - III. Karsztfejlődés konferencia Szombathely, 2001 (kivonat)

BURJÁN ZS.-VID G.: Radon potenciális forrásásványainak vizsgálata a Baradla barlangi kitöltésekben - 2003 (kutatási jelentés)