

# Radon és leányelemeinek kicserélődése a geoszférában

Daróczy Henriett

Környezettudományi Doktori Iskola

Nyomgáz ülepedés modellezése

KÖR 2/2/42

A légköri radioaktív anyagok csoportosítása keletkezésük szerint:

1. Földfelszínen keresztül a légkörbe jutó radioaktív izotópok és bomlástermékeik
2. A kozmikus sugárzás és a légköri gázok molekuláinak kölcsönhatásából származó radioelemek
3. Mesterséges radioaktív izotópok

Table 1. Radionuclides and their activity concentration range in the free atmosphere near ground level (United Nations, 1982; Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, 1984; Porstendörfer *et al.*, 1990)

Radionuclide	Half-time	Activity concentration (mBq m <sup>-3</sup> )	
Natural	<sup>3</sup> H	12.3 a	≈20
	<sup>14</sup> C	5736 a	≈40
	<sup>7</sup> Be	53.6 d	1–7
	RnD*	164 μs–26.8 min	1000–50,000
	<sup>210</sup> Pb	22.3 a	0.2–1
	<sup>210</sup> Po	138.4 d	0.03–0.3
	<sup>212</sup> Pb	10.6 h	20–1000
	<sup>212</sup> Bi	60.6 min	10–700
Artificial	<sup>131</sup> I	8.04 d	<0.0001 (16,000 <sup>†</sup> )
	<sup>137</sup> Cs	30.1 a	0.0005–0.005 (4000 <sup>†</sup> )
	<sup>106</sup> Ru	386.2 d	0.0001–0.002 (2000 <sup>†</sup> )

\* Short-lived radon daughters: <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi and <sup>214</sup>Po.

<sup>†</sup> After the nuclear accident in Chernobyl the highest value in Göttingen, 2–3 May 1986.

J. Porstendörfer (1994)

Radionuklid viselkedése a környezetben függ:

- Kémiai karakter
- Élettartam

Rn fizikai és kémiai tulajdonsága miatt nagy mozgékonyással rendelkezik

- Gáznemű, kémiailag inert nemesgáz
- 3,8 nap felezési idő

Izotóp jele	Hagyományos neve	Bomlási sor kezdő eleme	Közvetlen szülőeleme	Felezési ideje
$^{222}\text{Rn}$	radon	$^{238}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}$	3,8 nap
$^{220}\text{Rn}$	toron	$^{232}\text{Th}$	$^{224}\text{Ra}$	55 s
$^{219}\text{Rn}$	aktinon	$^{235}\text{U}$	$^{223}\text{Ra}$	4s

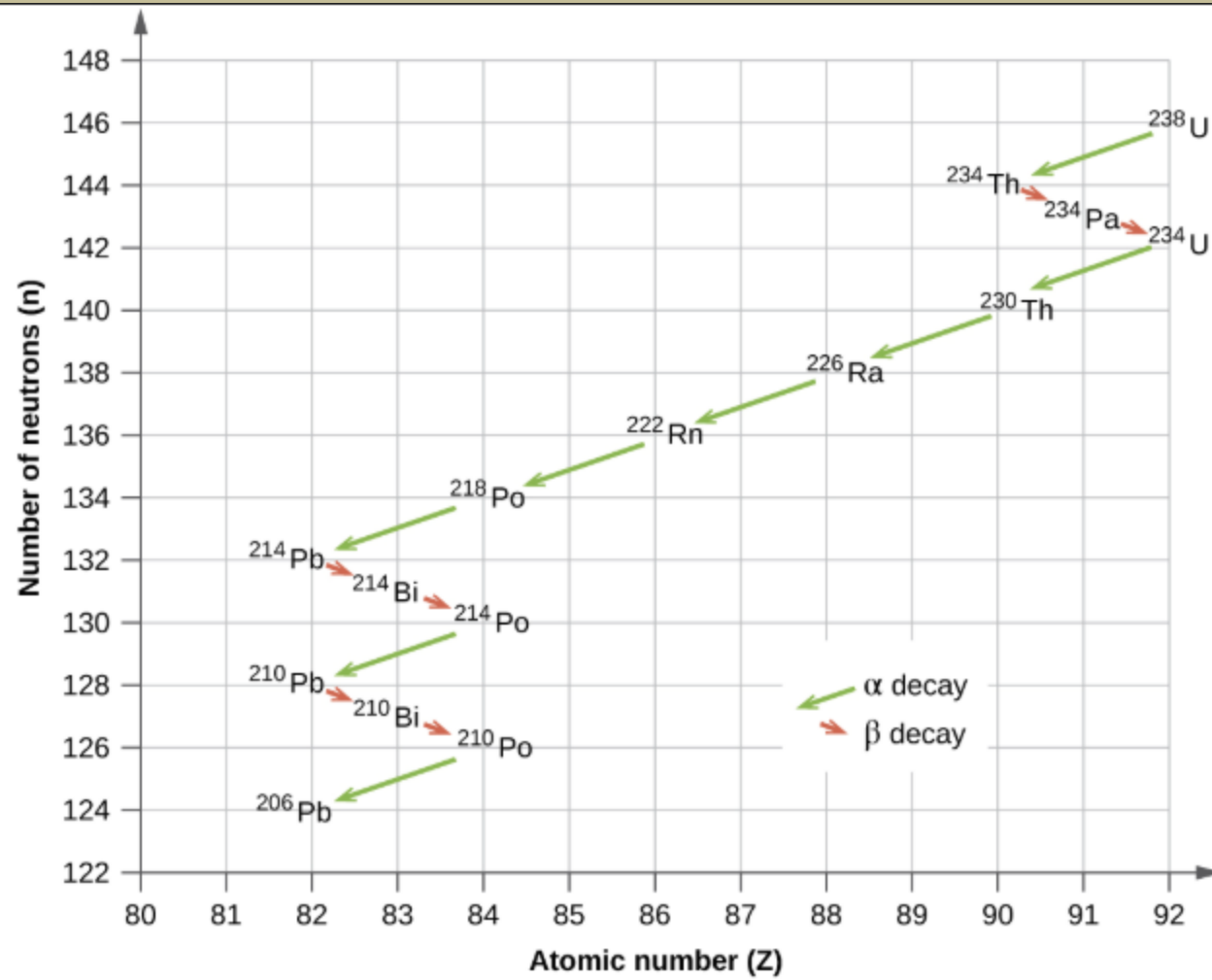
Levegő radioaktivitásának döntő hányadát a Rn és rövid felezési idejű radionuklidjai adják

Nyílt levegő Rn konc erősen függ a meteorológiai viszonyoktól

- Szárzöldön (1 m) 1-20 Bq/m<sup>3</sup> , magassággal csökken
- Tengerek, óceánok 0,1-1 Bq/m<sup>3</sup>

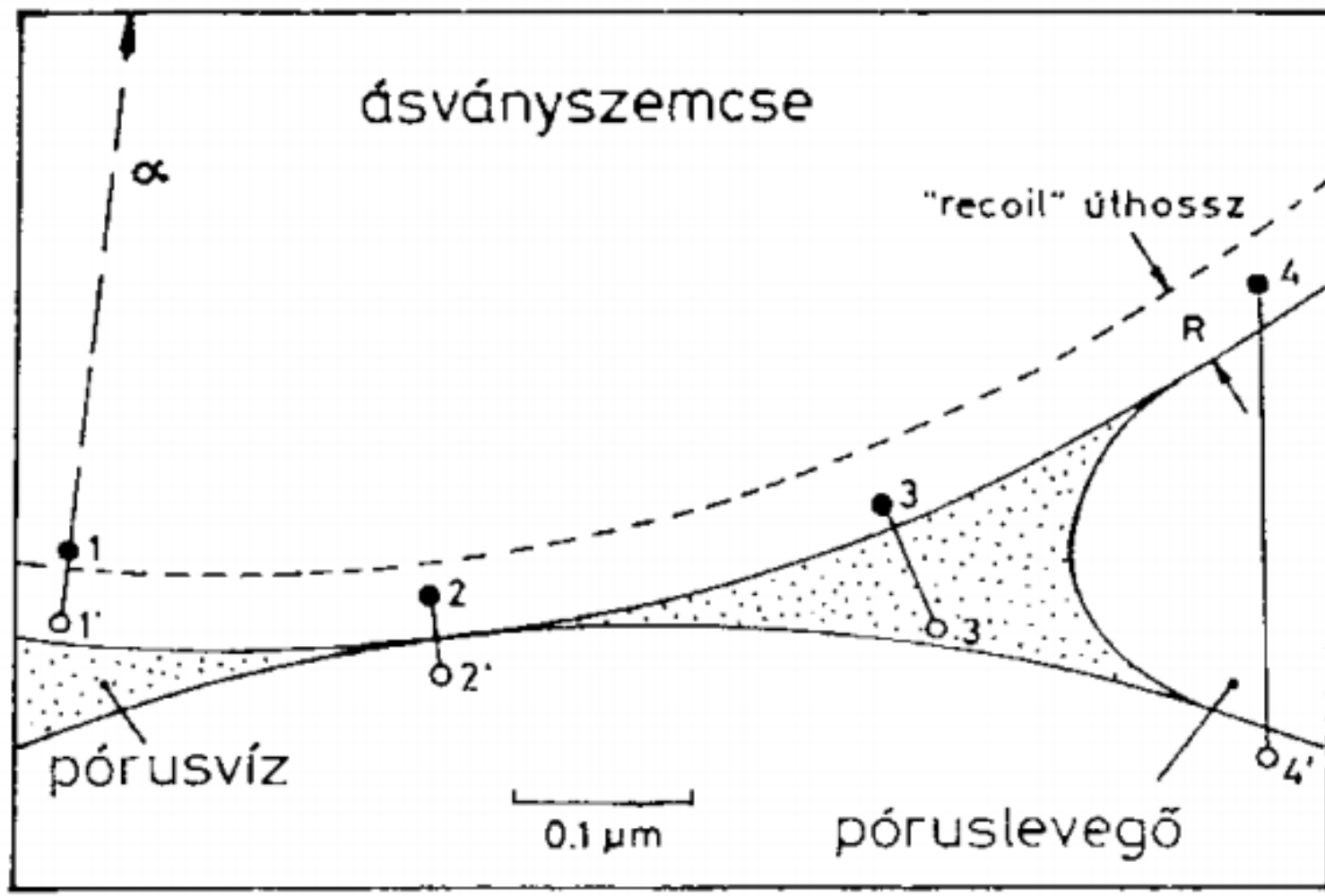
# A Rn kőzetekben, talajokban végbemenő migrációs folyamata:

1. Rn izotóp keletkezése
2. Rn kijutása az ásványi szemcsékből a szemcseközi térbe
3. Tényleges migráció folyamata a pórustérben



**Visszalökődési effektus – recoil**  
úthossz közeg függő:

- Kőzetben 20-70 nm
- Levegőben  $\sim 60\mu\text{m}$
- Folyadékban 100 nm



Rn-222 86 keV  
Rn-220 123 keV

Rn kijutása a pórustérbe – Somlai 2011.

**Rn emanáció : direkt-visszalökődési hányad + indirekt-visszalökődési hányad**

Kiszabadulási esélyek:

1. Ásványi szemcsében marad
2. Szomszédos szemcsébe kerül
3. Pórusvízbe érkezik → lefékeződik
4. Póruslevegőbe érkezik → nincs fékezés, szomszédos szemcsébe csapódik

Rn emanáció : direkt-visszalökődési  
hányad + indirekt-visszalökődési hányad

**Emanációs koefficiens ( $\eta_{Rn}$ ):** a kőzetek Ra-tartalmának elbomlása során keletkező Rn mennyiségének egy része jut kis a pórustérbe, és csak ez a hányad lesz képs a további migrációra a Rn élettartama alatt  
Általában 5-30%-os, de <1% és >50% is

Függ a kőzet

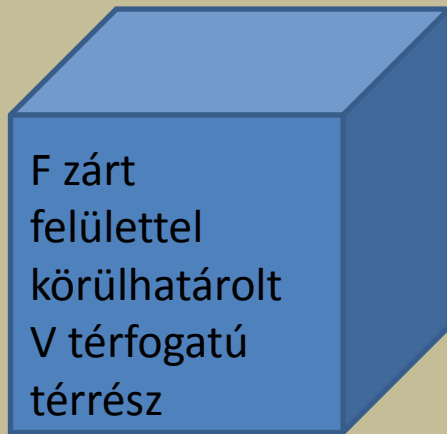
- Ásványi összetételétől
- Szerkezetétől
- nedvességtartalmától - többszörös eltérés nedves és száraz kőzet esetén

Legnagyobb emanálás – szemcsés szerkezetű, nedves kőzetek, ahol az U-  
ásványok zömmel a szemcsék felületén helyezkednek el (homokkövek,  
gránit)

## Rn migrációja – radioaktív bomlás, anyagmegmaradás

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V c dV = - \int_F \vec{j} dF - \int_V \lambda c dV + \int_V Q dV$$

$$\vec{j} = \vec{j}_{Diff} + \vec{j}_{filtr}$$



Koncentrációkülönbség által hajtott diffúzió

$$\vec{j}_{Diff} = -D \text{grad} c$$

Pórusokat kitöltő közeg mozgása - filtrációja

$$\vec{j}_{filtr} = c \vec{v}$$

A divergencia-tétel alapján a radontranszport-egyenlet differenciális alakja

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \text{div}(D \text{grad} c) - \text{div}(c v) - \lambda c + Q$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \operatorname{div}(D \operatorname{grad} c) - \operatorname{div}(cv) - \lambda c + Q$$

Egyszerűsítő feltételezések

- 1D-s mozgás – vertikális
- Időben állandósult, stacioner folyamat
- Közeg porózus, homogén, izotróp

$$D \left( \frac{d^2 c}{dz^2} \right) - \frac{d(cv)}{dz} - \lambda c + Q = 0$$

Rn diffúziós mozgása

Rn radioaktív bomlása

Rn filtrációja

Helyi Rn keletkezés intenzitása



## Rn diffúziós tényezője

Effektív porozitás: kőzetek egymással összefüggő pórusjáratai térfogatának és a teljes térfogatnak a hányadosa

Porózus kőzetben – effektív diffúziós tényező

A radonnak a tiszta póruskitöltő közegre vonatkoztatott diffúziós tényezője

$$D_{eff} = D_{Rn} \cdot \varepsilon_{eff}$$

Közeg porozitása

Ha a talaj pórusait kitöltő anyag nyugalomban van, akkor a Rn migrációt alapvetően meghatározó fizikai folyamat a diffúzió.

D elvi felső határa a Rn-nak a **levegőre** vonatkoztatott

$$D_{eff_{max}} = 0,1 \text{ cm}^2/\text{s}$$

**Porózus közegben :**

szemcsés szerkezetű, porózus, alacsony nedvességtartalmú, laza szerkezetű talajokban, homokokban

$$D_{eff_{max}} = 0,01 - 0,03 \text{ cm}^2/\text{s}$$

**Vízben**

$$D_{eff_{max}} = 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$$

## Diffúziós hossz

a forrástól azon távolság, amelyen a koncentráció e-ed részére csökken

$$z_D = \sqrt{\frac{D}{\lambda}}$$

porózus üledékek:  
néhány m,  
vízzel telített kőzet,  
talajpórusok:  
néhány cm

**Rn háttér** - Egy természetes közegben a termelődő Rn-koncentrációját a Ra koncentrációja határozza meg.

Szekuláris egyensúly esetén

$$c_i \cdot \lambda_i = \text{állandó}$$

Rn-koncentráció visszavezethető az U koncentrációra

$$c_{Rn} = c_{Ra} \cdot \frac{\lambda_{Ra}}{\lambda_{Rn}} = c_U \cdot \frac{\lambda_U}{\lambda_{Rn}}$$

Azonban a szemcséből kijutás korlátozott

$$c_{\text{háttér}} = \eta_{Rn} \cdot c_{Rn} = \frac{Q}{\lambda}$$

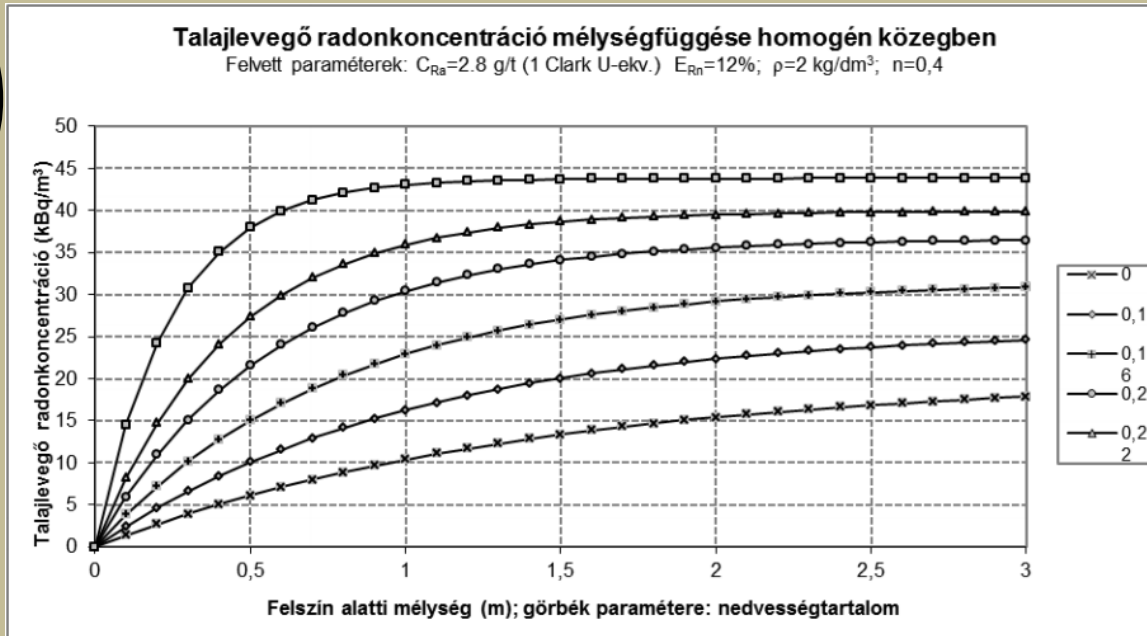
Egy közeg belsejében a  $c_{\text{háttér}}$  fog kialakulni, ha ennek értékét transzportfolyamatok nem változtatják meg.

A Rn-koncentráció **mélységi eloszlása** homogén talajban

$$c = c_{\text{háttér}} \cdot \left(1 - e^{-\frac{z}{zD}}\right)$$

$$c = \frac{Q}{\lambda} \cdot \left(1 - e^{-z \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{D}}}\right)$$

minél magasabb a talaj nedvességtartalma, a Rn-koncentráció annál nagyobb és annál hamarabb eléri a telítettségi szintet,  $c_{\text{háttér}}$ -t



## Rn exhaláció ( $E_{Rn}$ )

A közegben a határfelületre merőlegesen kialakuló Rn fluxust a diffúziós tényező és a koncentráció-gradiens szorzata

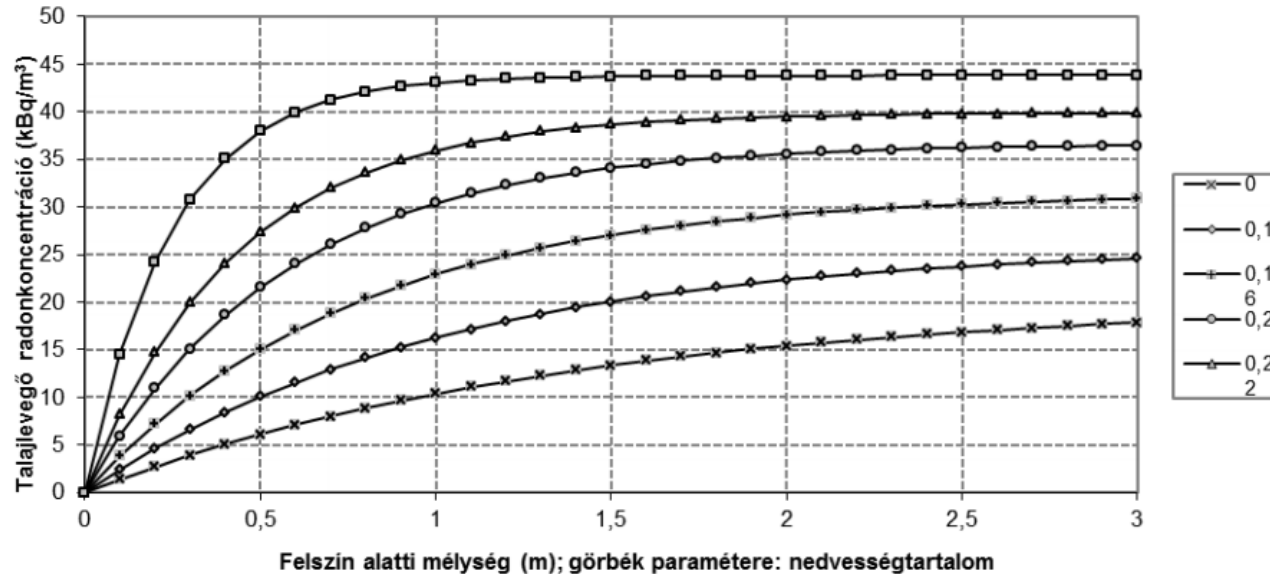
$$J_{Rn} = D \cdot \frac{dc}{dz}$$

$z = 0$  határfelületen, a felszínen mérhető értéke az  $E_{Rn} \rightarrow$  talajfelület egységnyi ( $1 \text{ m}^2$ ) felületén, egységnyi ( $1 \text{ s}$ ) idő alatt mekkora radon aktivitás (Bq) távozik

$$J_{Rn}(z=0) = E_{Rn} = c_{h\acute{a}tt\acute{e}r} \cdot \sqrt[2]{D \cdot \lambda}$$

### Talajlevegő radonkoncentráció mélységfüggése homogén közegben

Felvett paraméterek:  $C_{Ra}=2.8 \text{ g/t}$  (1 Clark U-ekv.)  $E_{Rn}=12\%$ ;  $\rho=2 \text{ kg/dm}^3$ ;  $n=0,4$



kisebb  
nedvességtartalomnál  
az exhaláció értéke  
nagyobb és fordítva

**SOIL/BUILDING MATERIAL**

**AIR**

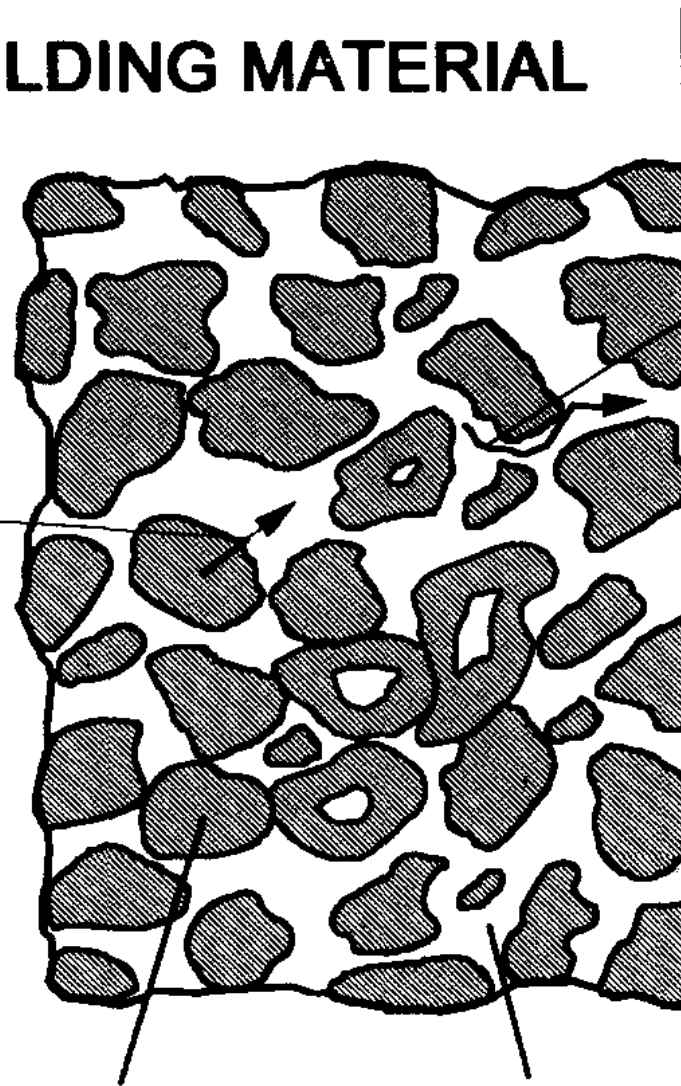
**EMANATION**  
(RECOIL; DIFFUSION)

**TRANSPORT**  
(DIFFUSION; CONVECTION)

**EXHALATION**

**GRAIN**

**PORE**



J. Porstendörfer (1994)

A levegőbe került Rn **vertikális transzportja** – elsősorban a termikus kicserélődés határozza meg

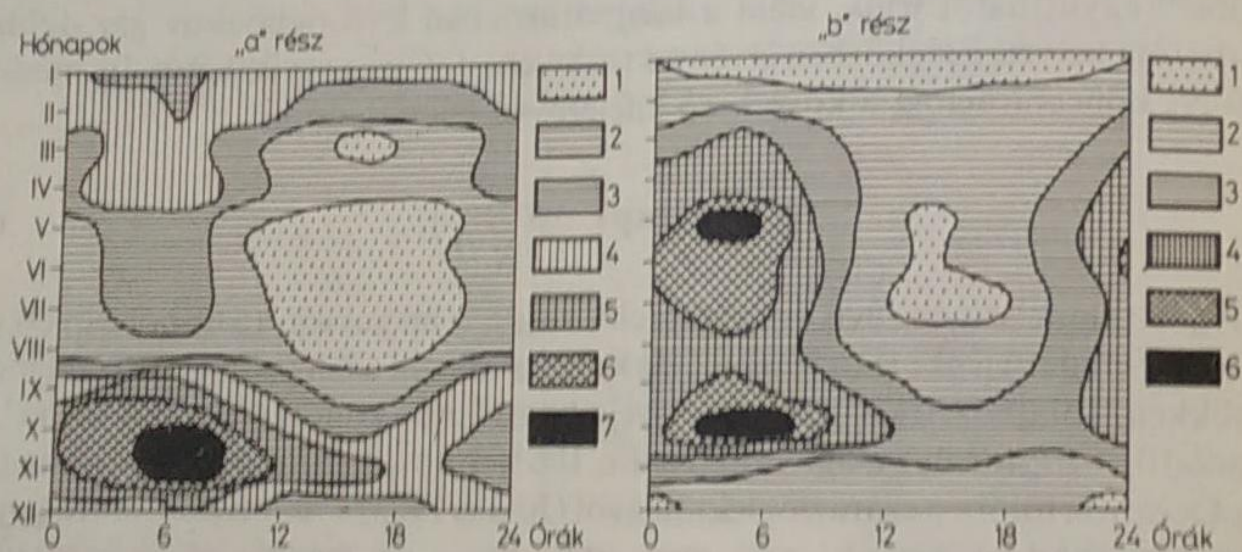
$$D \left( \frac{d^2 c}{dz^2} \right) - \frac{d(cv)}{dz} - \lambda c + Q = 0$$

A Rn-koncentráció mélységi eloszlása  $\frac{d(cv)}{dz} = 0$   $c = \frac{Q}{\lambda} \cdot \left( 1 - e^{-z \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{D}}} \right)$

$$\frac{d(cv)}{dz} = 0 \text{ és } Q = 0 \quad D \left( \frac{d^2 c}{dz^2} \right) - \lambda c = 0$$

$$c = c_0 \cdot e^{-h \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{D_{turb}}}}$$

A talajeredetű légköri radioaktivitás koncentrációja a magassággal exponenciálisan csökken  
 Szárazföldön Rn-222 ~1 Bq/m<sup>3</sup>, Rn-220 10<sup>-2</sup> Bq/m<sup>3</sup> nagyságrendű  
 Tengerek, óceánok esetén két nagyságrenddel kisebb  
 Erősen függ a meteorológiai feltételektől (turbulens diffúzió, csapadék kimosó hatása) és a talajállapottól (nedves, hóval borított, fagyott talaj exhalációja kisebb)



5.1. ábra. A radon („a” rész) és toron („b” rész) koncentrációjának napi és évi menete SIMON (1970) szerint. Az értékek  $\text{pCi}/\text{m}^3$  egységekben vannak kifejezve ( $1 \text{ pCi}/\text{m}^3 = 3,7 \cdot 10^{-2} \text{ Bq}/\text{m}^3$ ). A számokhoz tartozó koncentráció-intervallumok a következők:

Radon ( $^{222}\text{Rn}$ )		Toron ( $^{220}\text{Rn}$ )	
1	< 25	1	< 1
2	25–50	2	1–2
3	50–75	3	2–3
4	75–100	4	3–4
5	100–125	5	4–5
6	125–150	6	> 5
7	> 150		

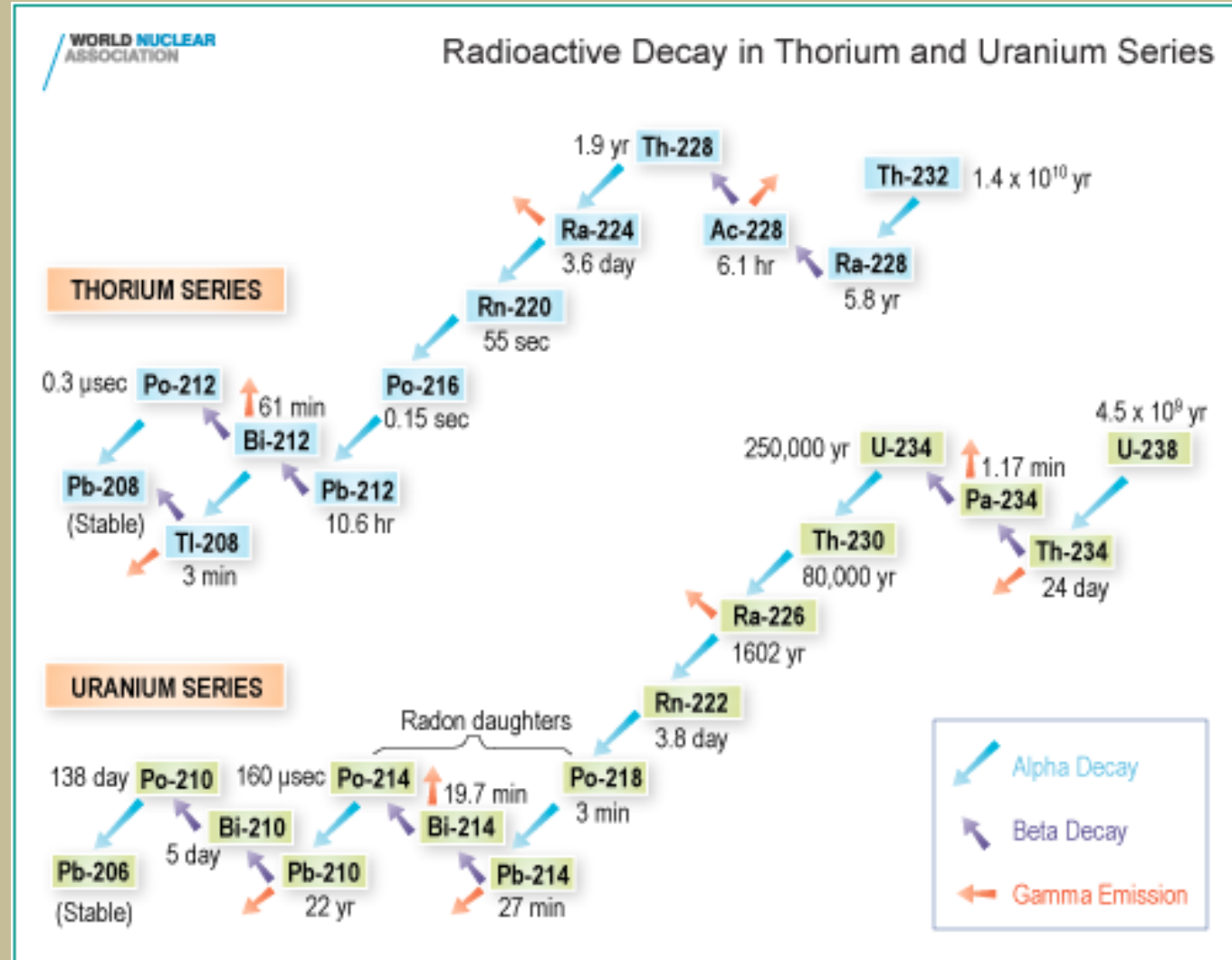
Maximális értékek mindig kora reggeli órákban fordulnak elő – légköri kicserélődés intenzitása minimális; a legkisebb koncentrációk a délutáni órákban, erős kicserélődési időszak

Évszakos változásoknak megfelelően a nyári hónapokban a konc. évi menetében minimum, délutáni órákban



# Rn leányok

- Egészségkárosító hatás – Schneeberger Bergkrankheit (Härting and Hesse 1879)
- Rövid felezési idő
- Fémek karakterű, nagy sebességgel és elektromos töltéssel rendelkező ionok



# Rn leányok

Table 1. Radionuclides and their activity concentration range in the free atmosphere near ground level (United Nations, 1982; Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, 1984; Porstendörfer *et al.*, 1990)

Radionuclide	Half-time	Activity concentration (mBq m <sup>-3</sup> )	
Natural	<sup>3</sup> H	12.3 a	≈ 20
	<sup>14</sup> C	5736 a	≈ 40
	<sup>7</sup> Be	53.6 d	1–7
	RnD*	164 μs–26.8 min	1000–50,000
	<sup>210</sup> Pb	22.3 a	0.2–1
	<sup>210</sup> Po	138.4 d	0.03–0.3
	<sup>212</sup> Pb	10.6 h	20–1000
	<sup>212</sup> Bi	60.6 min	10–700
Artificial	<sup>131</sup> I	8.04 d	<0.0001 (16,000 <sup>†</sup> )
	<sup>137</sup> Cs	30.1 a	0.0005–0.005 (4000 <sup>†</sup> )
	<sup>106</sup> Ru	386.2 d	0.0001–0.002 (2000 <sup>†</sup> )

\* Short-lived radon daughters: <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi and <sup>214</sup>Po.

<sup>†</sup> After the nuclear accident in Chernobyl the highest value in Göttingen, 2–3 May 1986.

J. Porstendörfer (1994)



A légköri Rn-koncentráció alapvetően az exhalációtól és a légköri felhígulási folyamatoktól függ, ez utóbbit meteorológiai viszonyok befolyásolják.

$10^3$ - $10^4$  nagyságrendű koncentráció gradiens a szilárd és levegő fázis között – folyamatos radon fluxus hajtó ereje a kőzetekben lévő radioaktív elemek bomlása

### Eliminációs folyamatok:

- Radioaktív bomlás
- Kimosódási folyamatok:
  - Száraz ülepedés
  - Nedves ülepedés
    - Rainout (in-cloud scavenging)
    - Washout (below-cloud scavenging)

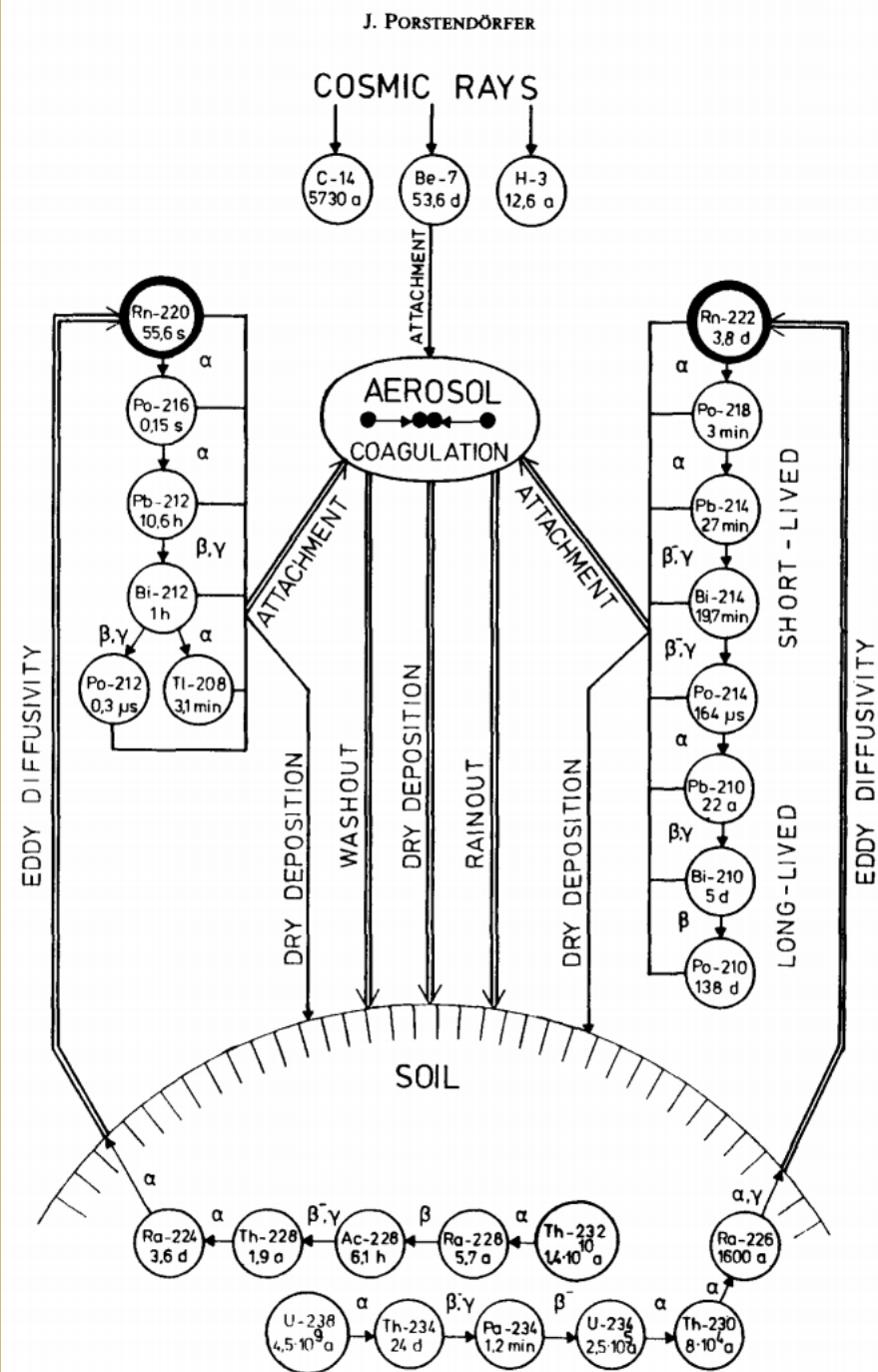
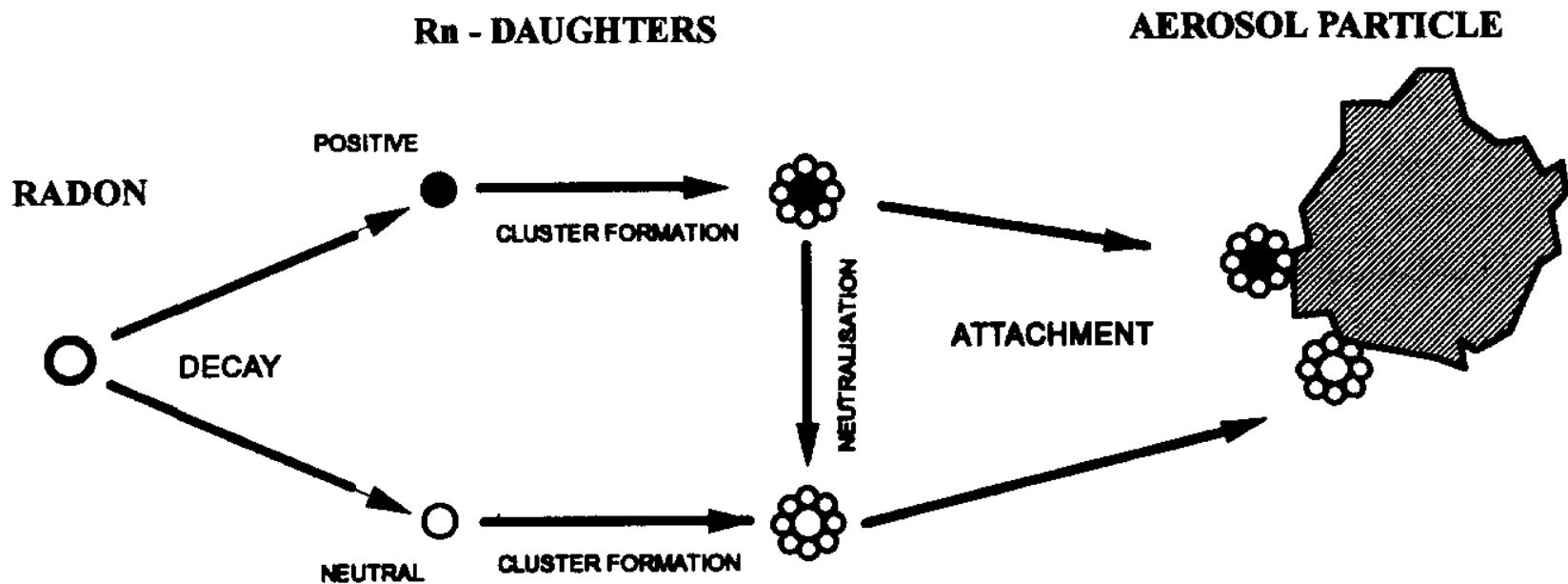


Fig. 1. Radon, thoron, and their decay products in the open atmosphere.

# Rn leányok

Nem sokáig maradnak a levegőben

1. <math><1\text{s}</math> alatt a nyomgázokkal és gőzökkel reakcióba lépnek, egy részük ionos állapotban marad a levegőben,  $d=0,5\text{-}5\text{nm}$  – UNATTACHED FRACTION
2. 1-100 s alatt por és aeroszol részecskék felületére tapadnak – ATTACHED FRACTION



A kötődés alapvetően diffúzió vezérelt folyamat az elektrosztatikai erők és a kinetikus gázelmélet figyelembe vételével

- $d > 1 \text{ mm}$   
diffúziós törvény érvényesül
- $d < 0,1 \text{ mm}$   
kinetikus gázelmélet

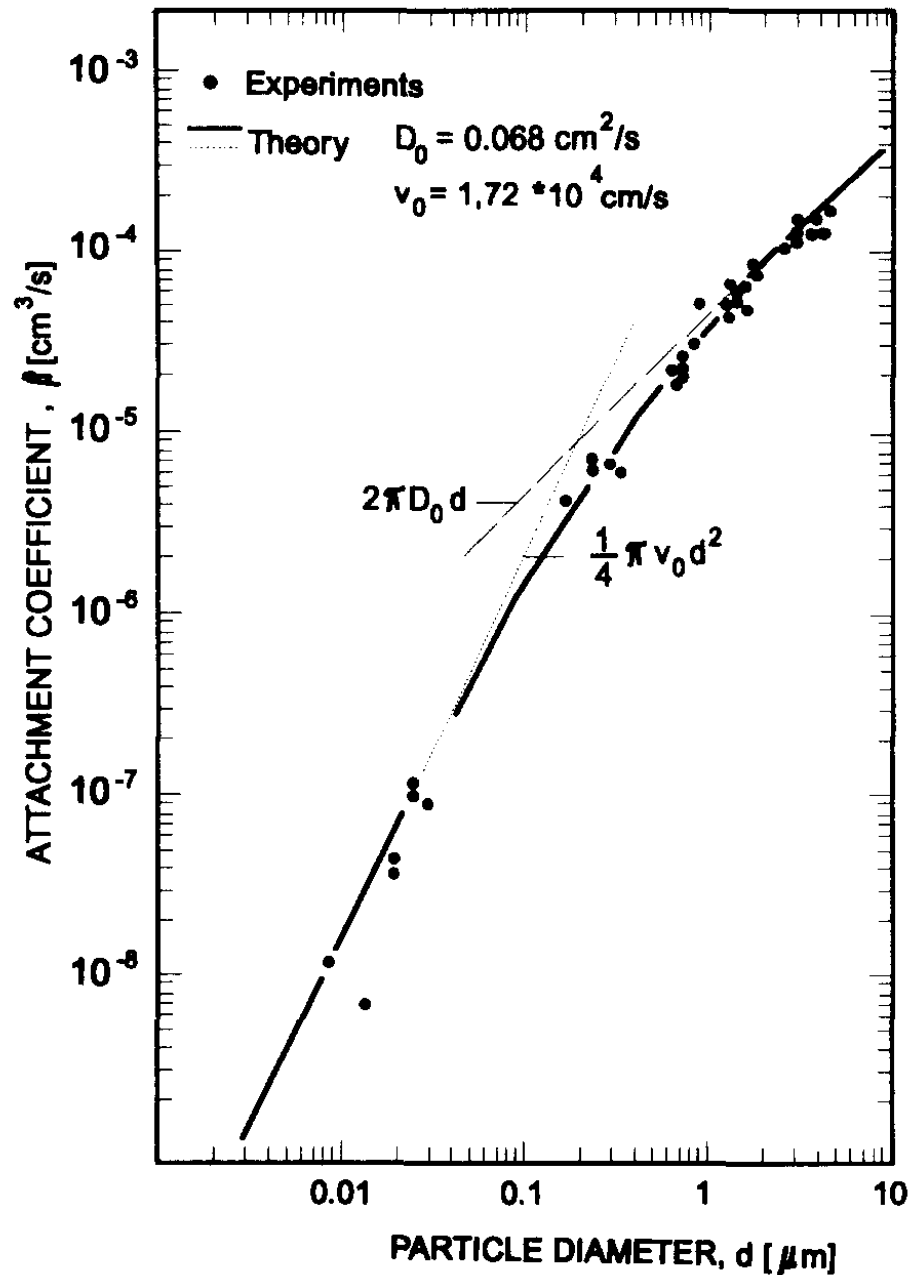
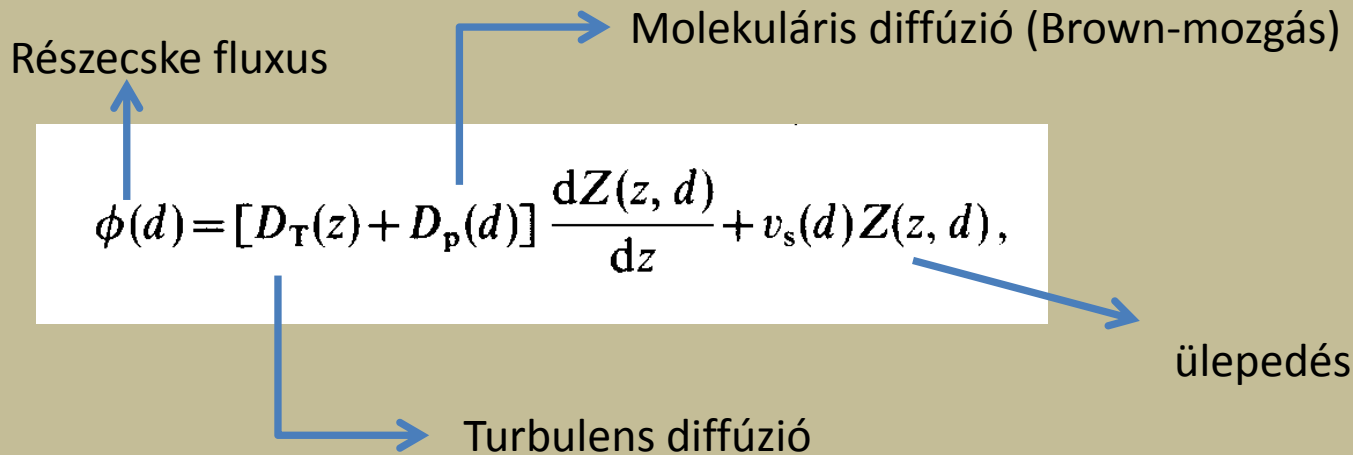


Fig. 4. The attachment coefficient of the radon/thoron daughters as a function of aerosol size (Porstendörfer and Mercer, 1978a; Porstendörfer *et al.*, 1979).

# Rn leányok

3. Deszorpció az aeroszol részecskékről – recoil effektus révén
4. Eltávozik a levegőből
  - Porrészecskékkel gravitációs úton kihullik a levegőbőlTehetetlenségi erők, interception, Brown-mozgás befolyásával
  - A környező tárgyak, falak felületére válik ki
    - Turbulens áramlás
    - Kiülepedés függ a részecske mérettől, felület érdességétől



Ülepedési sebesség

$$v_g = \frac{\phi(d)}{Z(z_1, d)},$$

$$\phi(d) = [D_T(z) + D_p(d)] \frac{dZ(z, d)}{dz} + v_s(d)Z(z, d),$$

$$v_g = \frac{\phi(d)}{Z(z_1, d)},$$

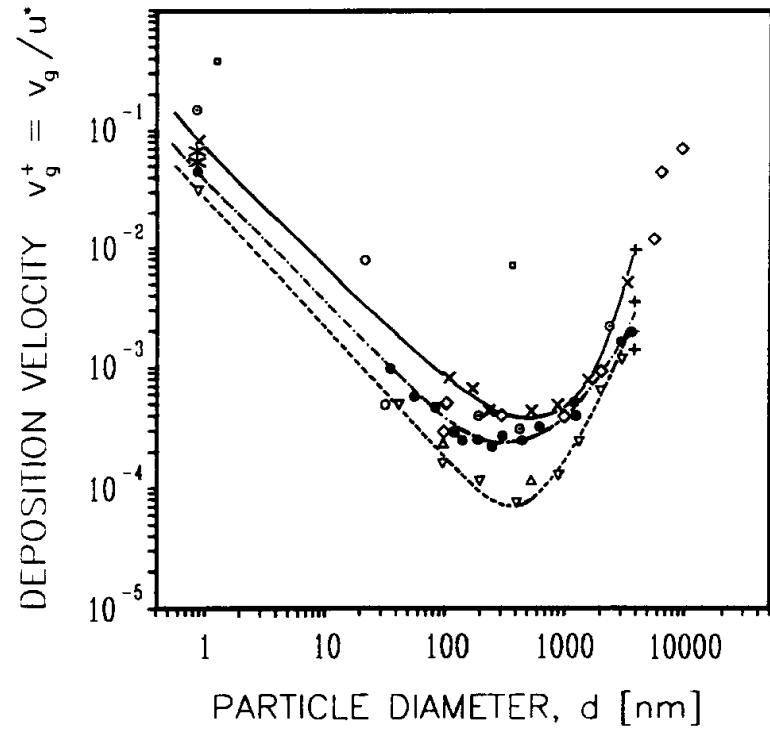


Fig. 6. Deposition velocity ( $v_g$ ) normalized by the friction velocity ( $u^*$ ) as a function of the aerosol particle diameter

- × — Simulated grass
- ● - Filter paper (Porstendörfer *et al.*, 1978b; Ahmed, 1979)
- ▽ - Al foil
- Barley
- \* Grass (Chamberlain, 1966)
- ⊕ Water (Möller, 1970)
- △ Filter (Clough, 1973)
- ◇ Filter (Sehmel, 1973; Sehmel *et al.*, 1974)
- Grass (Little and Wiffen, 1977)
- + Grass (Horbert *et al.*, 1976)
- Wheat (Butterweck, 1991)

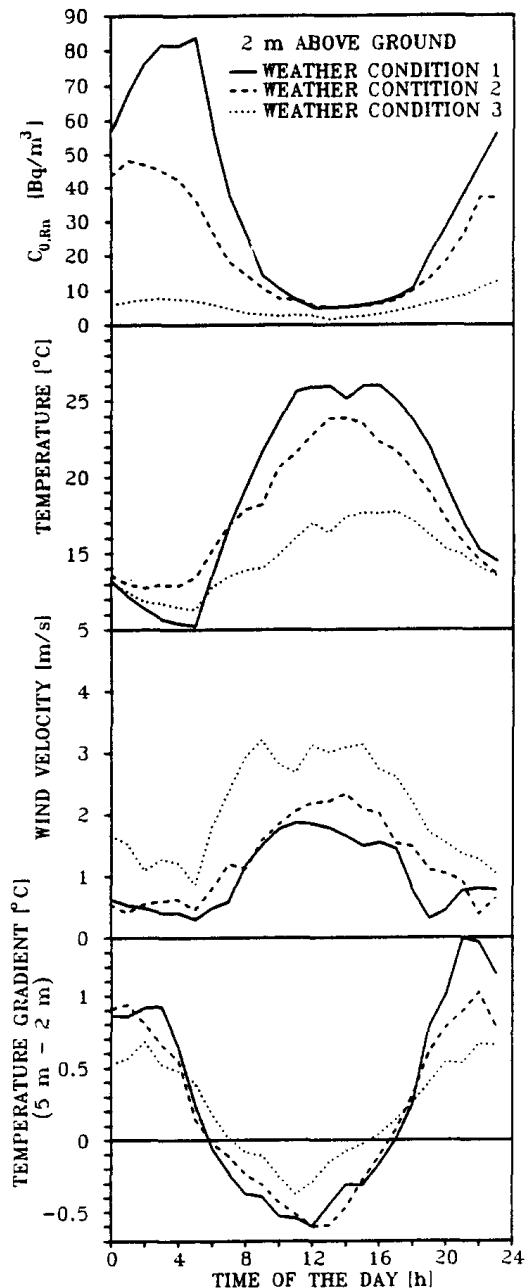
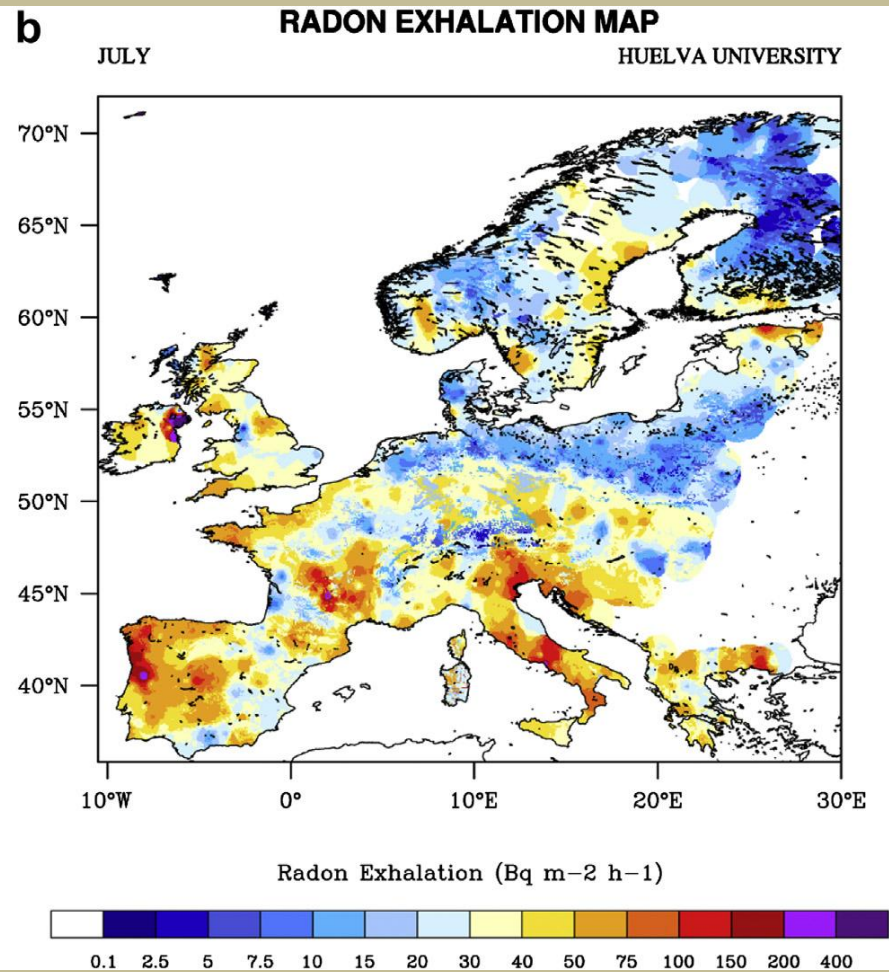
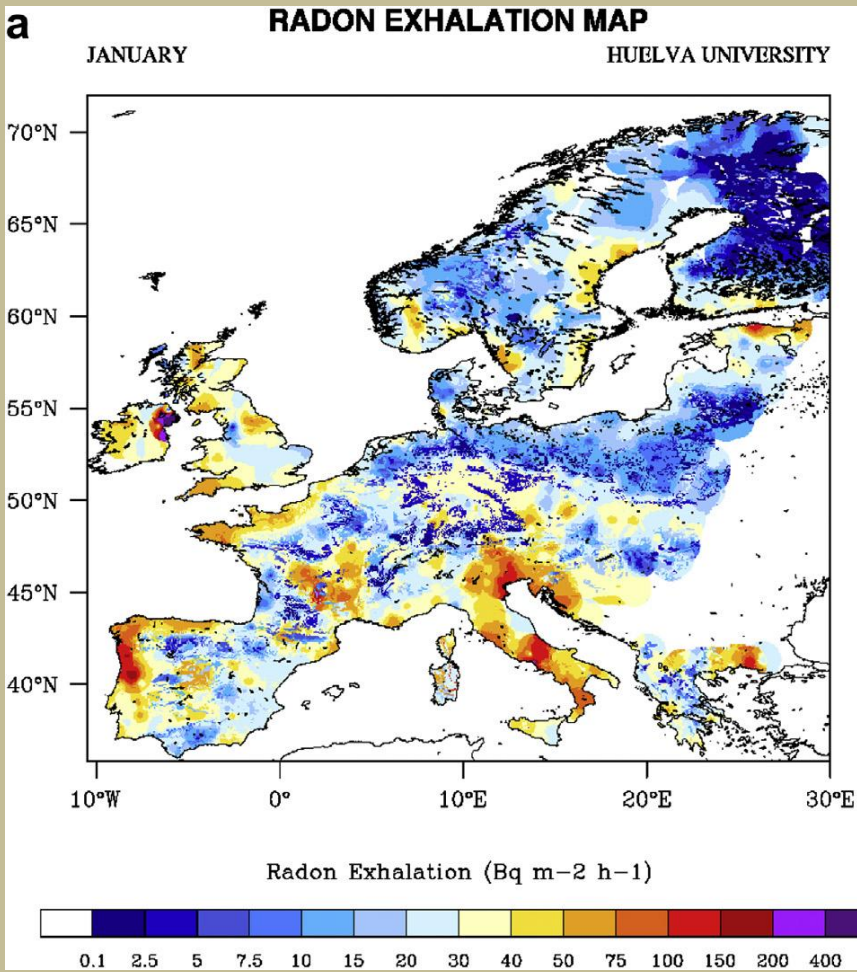


Fig. 8. Diurnal variation of the radon concentration, temperature, wind velocity and temperature gradient for three weather conditions 2 m above the ground (ground with canopy of wheat) averaged over the time period: 3–30 July 1989 (Porstendörfer *et al.*, 1994b).

Rn koncentráció, hőmérséklet, szélesség, vertikális hőmérsékleti gradiens napi ingadozása 3 különböző időjárási helyzet esetén

1. Napos időjárási helyzet, stabil légköri viszonyok, T gradiens az éjjel-nappal szerint változik, magas Rn konc éjjel, hajnalban; délben, délután negatív T gradiens, keveredés, alacsony Rn konc
2. Felhős időjárási helyzet, alacsonyabb T gradiens a kisebb értékek felé tolja el a Rn konc-t
3. Szeles időjárási helyzet



I. López-Coto, J.L. Mas, J.P. Bolivar (2013)

- 222Rn flux map on surface ( $\text{Bq m}^2 \text{ h}^{-1}$ ) for the average month of January for the period 1957-2002.
- 222Rn flux map on surface ( $\text{Bq m}^2 \text{ h}^{-1}$ ) for the average month of July for the period 1957-2002.



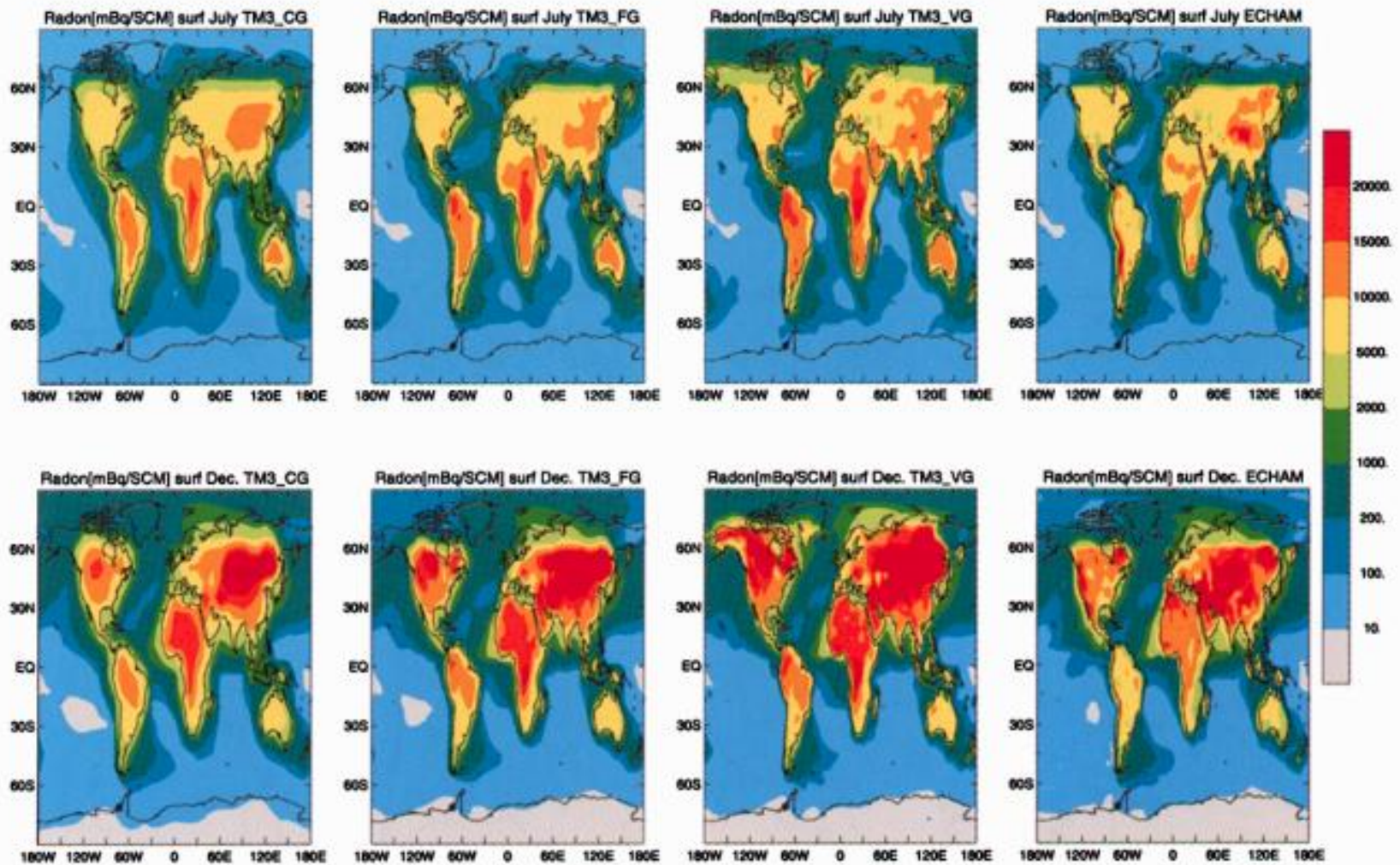


Fig. 1. July and December monthly average radon<sup>222</sup> concentrations (mBq SCM<sup>-1</sup>) at the earth's surface for TM3\_CG (7.5°–10°), TM3\_FG (3.75°–5°), TM3\_VG (2.5°–2.5°) and ECHAM\_T42 (2.8°–2.8°).

Frank Dentener, Johann Feichter, Ad Jeuken (1999)



# Felhasznált irodalom:

- Dr. Barótfi István (szerk.) (2000): Környezettechnika. *Mezőgazda kiadó*, Digitális Tankönyvtár.
- Bencze Pál, Major György, Mészáros Ernő (1982): Fizikai meteorológia. *Akadémia Kiadó*, Budapest.
- F. Dentener, J. Feichter, A. Jeuken (1999): Simulation of the transport of Rn-222 using on-line and off-line global models at different horizontal resolutions: a detailed comparison with measurements. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 51:3, 573-602.
- J. Paatero, A. Ioannidou, J. Ikonen, J. Lehto (2017): Aerosol particle size distribution of atmospheric lead-210 in northern Finland. *Journal of Environmental Radioactivity*, 172., 10-14.
- I. López-Coto, J.L. Mas, J.P. Bolivar (2013): A 40-year retrospective European radon flux inventory including climatological variability. *Atmospheric Environment*, 73., 22-33.
- J. Porstendörfer (1994): Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *Journal of Aerosol Science*, Vol. 25, p 219-263.
- Dr. Somlai János (szerk.) (2011): Sugárvédelem. *Környezetmérnöki Tudástár*, 14. kötet, Veszprém.
- World Nuclear Association [www.world-nuclear.org/](http://www.world-nuclear.org/)

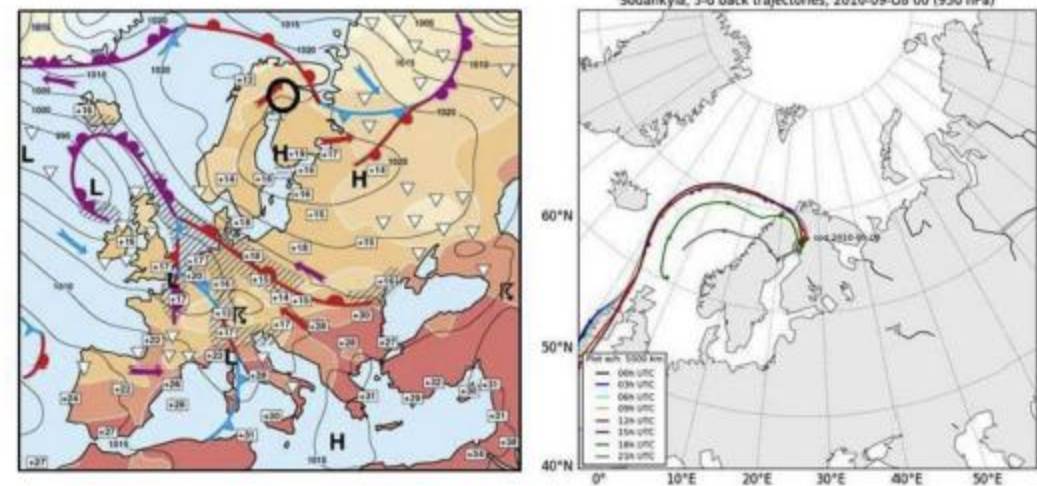


Fig. 4. Left panel: Weather situation in Europe 8 September 2010 12 UTC. The black circle indicates the location of Sodankylä (Chart: Finnish Meteorological Institute). Right panel: 120 h long FLETRA air mass back-trajectories arriving to Sodankylä 8 September 2010 on the 950 hPa pressure level 00, 03, 06, 09, 12, 15, 18, and 21 UTC.

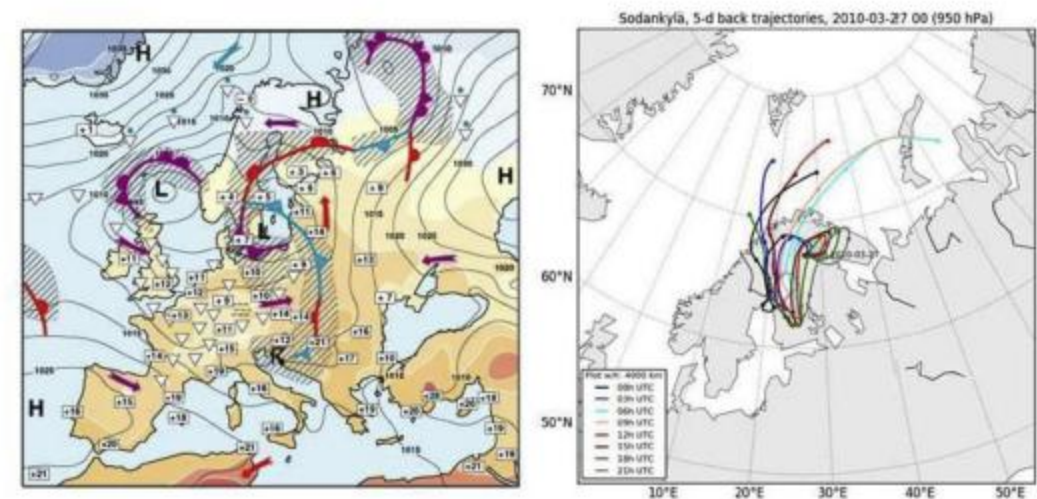


Fig. 5. Left panel: Weather situation in Europe 27 March 2010 12 UTC (Chart: Finnish Meteorological Institute). Right panel: 120 h long FLETRA air mass back-trajectories arriving to Sodankylä 27 March 2010 on the 950 hPa pressure level 00, 03, 06, 09, 12, 15, 18, and 21 UTC.

J. Paatero, A. Ioannidou, J. Ikonen, J. Lehto (2017):

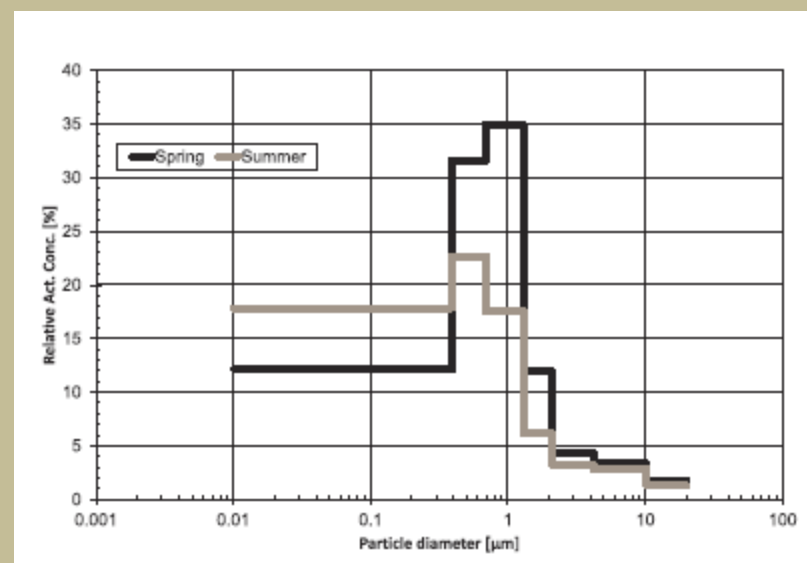
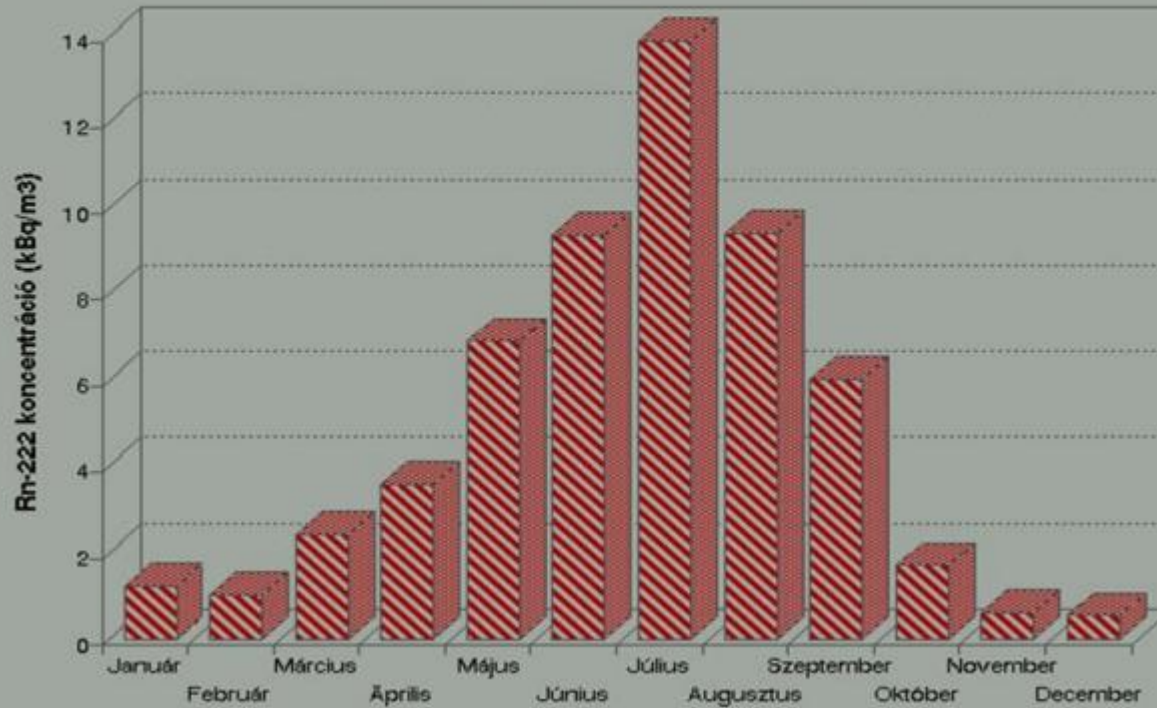


Fig. 1. The average relative activity concentration of <sup>210</sup>Pb in different particle size classes in spring and summer. The lower ends of the lines are arbitrary.

### Tapolcai Kórházbarlang Rn-222 havi átlagértékek 1994



***Barlangi radonkoncentráció tipikus változása***