

TERRESZTRIÁLIS RADIOAKTIVITÁS MAGYARORSZÁGI VÁLYOGBAN ÉS VÁLYOGHÁZAKBAN KÜLÖNÖS TEKINTETTEL A TORONRA (^{220}Rn)

készítette

Szabó Zsuzsanna

Litoszféra Fluidum Kutató Labor

Közöttani és Geokémiai Tanszék, Eötvös Loránd Tudományegyetem

Doktori értekezés

Eötvös Loránd Tudományegyetem

Környezettudományi Doktori Iskola (Kiss Ádám, Prof., Galács András, Prof.)

Környezetfizika program (Kiss Ádám, Prof., Jánosi Imre, Prof.)

Tézisfüzet

Témavezetők:

Szabó Csaba, Ph.D.

Litoszféra Fluidum Kutató Labor

Közöttani és Geokémiai Tanszék, Eötvös Loránd Tudományegyetem

Horváth Ákos, Ph.D.

Atomfizikai Tanszék, Eötvös Loránd Tudományegyetem



**Budapest
2013**

1. BEVEZETÉS ÉS CÉLOK

A radon (^{222}Rn) és toron (^{220}Rn) izotópok rendre az ^{238}U és ^{232}Th teresztriális (földkérgi) radioaktív bomlási sorok gáznemű tagjai. Ezek felelősek egy átlagos ember természetes forrásból származó éves effektív dózisterhelésének kb. feléért (UNSCEAR 2000). A múltban a toron járulékát elhanyagolhatóan tekintették annak rövid felezési ideje miatt. Azonban ma már tudjuk, hogy néhány, bizonyos környezetben jelentősen hozzájárulhat a belső dózisterheléshez (UNSCEAR 2006). Számos tanulmány (pl. Yonehara et al. 2005) emelkedett beltéri radon és toron aktivitás koncentrációkat mutatott ki talajból és sárból épült épületekben, amelyek hasonlóak a magyarországi vályogházakhoz. Ezen kutatás fő célja így az volt, hogy értékelje a Magyarországon használt vályog építőanyag külső és belső dózisterhelésben játszott szerepét, az eredmények eloszlásával és évszakos változásaival együtt. A vályogminták vizsgálata során hozzájárultam az alkalmazott radon- és toronemanáció meghatározási módszerek felmerülő problémáinak megoldásához is, ahol az emanáció az építőanyag pórusterébe, annak szemcséiből visszalökődő vagy diffundáló radon és toron atomokat jelenti.

2. AJÁNLOTT ÉRTÉKEK

A lakóépületekben kapható külső dózisterhelés korlátozására számos ún. építőanyag kockázati index létezik. Ezek közül a kiválasztott rádium ekvivalens (Ra_{eq}) és aktivitás-koncentráció (I) indexek határértékei rendre 370 Bq kg^{-1} és 1, amely értékek kb. 1 mSv a^{-1} külső effektív dózistnak felelnek meg (EC 1999). A belső dózisterhelést illetően az Egészségügyi Világszervezet (WHO 2009) 300 Bq m^{-3} lakótéri radonaktivitás-koncentrációt jelöl meg, mint maximálisan megengedhető határértéket. Ez nagyságrendileg 10 mSv a^{-1} effektív dózist jelent (ICRP 2009). Hasonló ajánlás nem létezik a toron izotópot illetően. Disszertációmban ugyanehhez a 300 Bq m^{-3} -es értékhez viszonyítom a kapott eredményeket.

3. VIZSGÁLT TERÜLETEK

Adatgyűjtésre három különálló, vályogházak szempontjából tipikus területet választottam ki. Ezek Békés megye, a gránit alapkőzetű Mórágyi-rög és a Sajó-Hernád völgy negyedidőszaki üledékes területei. Ezen területek tizenkilenc településéről, összesen 46 vályog építőanyag mintát gyűjtöttem laboratóriumi vizsgálatok céljából. Egy területet, Békés megyét, jelöltem ki helyszínen végzett beltéri mérésekre, amelyekre 53 vályogházában került sor.

4. MÓDSZEREK

Laboratóriumi módszerek a Békés megye, Mórágyi-rög és Sajó-Hernád völgy területeiről származó 46 vályog építőanyag mintán:

- radonemanáció meghatározása RAD7 detektorral az egyensúlyi aktivitás-koncentrációt mérő, valamint a radon feltöltődését mérő módszerekkel párhuzamosan, azok összehasonlítása, a mérési elrendezés radon kiszökésének hatása a mérési eredményekre, toronemanáció meghatározása RAD7 detektorral és az azt lehetővé tevő minta geometriáját és a toron mintatartó kamrában történő felhígulását is figyelembe vevő új adatelemzési módszer kidolgozása,
- ^{226}Ra -, ^{232}Th - és ^{40}K -aktivitás-koncentrációk mérése γ -spektroszkópiával, valamint ezek alapján radon- és toronemanációs együtthatók, építőanyag kockázati indexek (Ra_{eq} és I) számítása és külső dózisterhelés becslése,
- szemcseméret eloszlás meghatározása nedves szitálás és lézeres szemcseméret eloszlás mérő segítségével, valamint ez alapján fajlagos felület becslése.

Helyszíni módszerek Békés megye 53 vályogházában:

- beltéri radon- és toronaktivitás-koncentrációk meghatározása négy évszakban, 10 cm-re a faltól maratott nyomdetektor párokkal, valamint belégzési (belső) dózis becslése,
- ekvivalens γ -dózisteljesítmény mérése FH 40 G-L10 eszközzel.

Adatelemzésre használt statisztikai módszerek:

- különböző mintacsoportok középértékeinek összehasonlítása Mann-Whitney (Wilcoxon) hipotézis teszttel,
- statisztikai eloszlások normalitás és lognormalitás vizsgálata Shapiro-Wilk hipotézis teszttel,
- korreláció analízis Pearson féle lineáris korrelációs együtthatókkal.

5. TÉZISEK

1. Meghatároztam egy – nagy mintaszám esetén – időtakarékos egyensúlyi aktivitás-koncentrációt mérő radonemanáció meghatározási módszer érzékenységét a mérési elrendezés radon kiszökésének mértékére. Erre a radon feltöltődését mérő, és a radon eresztés mértékéről is információt adó időigényesebb módszerrel történő összehasonlítás nyújtott lehetőséget. Az eredmények alapján $0.0025-0.003 \text{ h}^{-1}$ (α), kb. a radon bomlási állandójának 30-40 %-a alatt kell bizonyítottan tartani a radon kiszökést az időtakarékos egyensúlyi aktivitás-koncentrációt mérő módszer megfelelő, pontos eredményt adó használatához (Szabó et al. 2011).

2. Egy kísérletben kimértem a minta vastagságától függő RAD7 detektor toronaktivitás-koncentráció választ, amely egy nem-lineáris összefüggést mutat. Ezzel hozzájárultam az ezt leíró modellhez is, amely a minta geometriája mellett azt is figyelme veszi, hogy a toron felhígul a mintatartó kamrában a RAD7 detektorból visszaérkező csökkent toronaktivitás-koncentrációval. A modell jól illeszkedik a kísérleti eredményeimre. Ennek az illesztésnek a segítségével egy $1-3 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ értékű toron diffúziós állandót becsültem a vályog építőanyagban, amelyet felhasználtam egy új módszerben a vizsgált minták toronemanáció meghatározására (Csige, Szabó et al. 2013).

3. Igazoltam, hogy a magyarországi vályog építőanyag külső dózisterhelés szempontjából nem jelent semmilyen kockázatot. A megfontolásra javasolt építőanyag kockázati indexek (rádium ekvivalens index, Ra_{eq} és aktivitás-

koncentráció index, I) mind a 46 – Békés megyéből, a Mórággyi-rög területéről és a Sajó-Hernád völgyéből származó – vályog építőanyag minta esetén jóval a határértékek (370 Bq kg^{-1} és 1, egységnyi) alatt voltak és szintén kisebbek, mint más országok hasonló építőanyagaira meghatározott értékek. Emellett, mind a becsült éves külső effektív dózis és a helyszínen mért beltéri γ -dózisjeljesítmény értékek alapján a vályog építőanyagtól származó külső effektív dóziszárulék minden esetben az 1 mSv a^{-1} megkövetelt érték alatt marad (Szabó et al. 2013).

4. Bemutattam, hogy magyarországi vályogépületekben, mind a radontól, mind a torontól és leányelemeiktől származó belső dózisterhelés nem elhanyagolható számú esetben meghaladja a WHO által ajánlott maximális radonaktivitás-koncentrációnak (300 Bq m^{-3}) megfelelő értéket. Az általam mért radon- és toronaktivitás-koncentráció medián értékek rendre 188 és 232 Bq m^{-3} voltak Békés megye területén. Elfogadva az adatok lognormális eloszlását, a vályogházak 14-17 %-ában várható a 300 Bq m^{-3} -es szintnél nagyobb radonaktivitás-koncentráció, amíg normális eloszlást tapasztalva 29-32 %-ukban lesz ugyanennél nagyobb toronaktivitás-koncentráció 10 cm-re a faltól. A radontól származó becsült éves effektív dózis a vizsgált 53 vályogépület 7 %-ában meghaladta a 10 mSv a^{-1} szintet. Ugyanitt az elérhető legjobb dózisbecslés alapján, a toron még átlagosan 30 % növekményt okozhat (Szabó et al. in press).

5. Igazoltam, hogy a vályog építőanyag fontos radon- és toronforrás szerepének az oka azok emelkedett radon- és toronemanációs együtthatói. Mind a 46 – Békés megyéből, a Mórággyi-rög területéről és a Sajó-Hernád völgyéből származó – vályog építőanyag mintára általánosságban emelkedett radon- és toronemanációs együtthatókat (rendre 27 és 18 %) határoztam meg, ugyanakkor viszonylag kicsi ^{226}Ra - és ^{232}Th -aktivitás-koncentrációkat (rendre 28 és 32 Bq kg^{-1} , Szabó et al. 2013).

6. Bemutattam, hogy a vályog építőanyag ^{226}Ra - és ^{232}Th -aktivitás-koncentrációja, radonemanációs együtthatója, valamint becült fajlagos felülete szignifikáns különbségeket mutat a három különböző geológiai háttérrel rendelkező vizsgált területen (Békés megyében, a Mórágyi-rögön és a Sajó-Hernád völgyében). A legnagyobb vályog építőanyagban mérhető ^{226}Ra - és ^{232}Th -aktivitás-koncentrációk a lösszel fedett Mórágyi-rög gránitos alapközetéhez köthetők (Szabó et al. 2013). A Sajó-Hernád völgy mintáiban pedig a radonemanációs együttható szignifikánsan nagyobb. Azonban, a szemcseméret eloszlásból becült fajlagos felület értéke Békés megye mintáiban emelkedett.

7. Kimutattam, hogy a helyszínen mért beltéri radon-, toronaktivitás-koncentrációk és γ -dózsisteljesítmény karakterisztikus területi eloszlással rendelkeznek a vizsgált Békés megyei vályogházakban. Ezeket az értékeket a helyi, negyedidőszaki üledékes geológiai képződmények szerint csoportosítva, mindegyik esetén, agyagon detektáltam és így itt várhatók a legnagyobb értékek a löszös és tözeges területekkel szemben (Szabó et al. in press). A geológiai képződmények korát – pleisztocén és holocén – összehasonlítva, mérsékelten (<95 % konfidencia szint) nagyobb értékeket mértem a holocén korú formációkon.

8. Különböző szezonális változékonyságot határoztam és magyaráztam meg a helyszínen, vályogházakban mért radon- és toronaktivitás-koncentrációkra és azok statisztikai, vagyis lognormális és normális eloszlásaira. A radon értékek mediánja télen és ősszel nagy, tavasszal közepes, majd nyáron kicsi így egy közel tipikus eloszlást mutatnak. A toron medián ugyanakkor folyamatos csökkenést mutat téltől őszig. A radon változásait az évszakra jellemző átlaghőmérséklethez, valamint a nyári szellőztetés megnövekedett mértékéhez kapcsoltam, amíg a toron, a megfigyelés szerint, a csapadék mennyiségével mozgott együtt az egyéves mérési időszak során (Szabó et al. in press).

FONTOSABB PUBLIKÁCIÓK

- Szabó, Zs.**, Jordan, G., Szabó, Cs., Horváth, Á., Holm, Ó., Kocsy, G., Csige, I., Szabó, P. & Homoki, Zs. (**in press**) Radon and thoron levels, their spatial and seasonal variations in adobe dwellings – a case-study at the Great Hungarian Plain. *Isotopes in Environmental and Health Studies*, DOI:10.1080/10256016.2014.862533
- Csige, I., **Szabó, Zs.** & Szabó, Cs. (**2013**) Experimental technique to measure thoron generation rate of building material samples using RAD7 detector. *Radiation Measurements* 59, 201–204.
- Szabó, Zs.**, Völgyesi, P., Nagy, H.É., Szabó, Cs., Kis, Z. & Csorba, O. (**2013**) Radioactivity of natural and artificial building materials – a comparative study. *Journal of Environmental Radioactivity* 118, 64–74.
- Szabó, Zs.**, Szabó, Cs. & Horváth, Á. (**2011**) Comparison of two ^{222}Rn mass exhalation rate measurement methods by study of Hungarian adobe building materials. Nordic Society for Radiation Protection Conference Proceedings, Reykjavik, <http://www.nsf.org/NSFS-2011/documents/session-12/S12-O7.pdf>

REFERENCIÁK

- EC (1999) Radiation Protection Report No. 112.
- ICRP (2009) ICRP Ref 00/902/09.
- UNSCEAR (2000) Annex B, 83–156. in: UNSCEAR Report.
- UNSCEAR (2006) Annex E, 197–334. in: UNSCEAR Report.
- WHO (2009) WHO Press, ISBN: 978 92 4 154767 3.
- Yonehara et al. (2005) International Congress Series 1276, 58–61.