

Doktori értekezés tézisei

A radonkibocsátás köztettani és tektonikai hátterének vizsgálata a Soproni-hegységben és környékén

Freiler Ágnes

KÖRNYEZETTUDOMÁNYI DOKTORI ISKOLA

Iskolavezető: Dr. Jánosi Imre
egyetemi tanár

KÖRNYEZETFIZIKA DOKTORI PROGRAM

Programvezető: Dr. Jánosi Imre
egyetemi tanár

Témavezetők:
Dr. Horváth Ákos
egyetemi docens

Eötvös Loránd Tudományegyetem

Dr. Török Kálmán
tudományos főmunkatárs

Magyar Földtani és Geofizikai Intézet



EÖTVÖS LORÁND TUDOMÁNYEGYETEM

TERMÉSZETTUDOMÁNYI KAR

Budapest

2016

1. Bevezetés

A radon (^{222}Rn) kutatása az utóbbi évtizedekben fontos kutatási témává vált, ugyanis belterekben felhalmozódva növeli a tüdőrák kialakulásának kockázatát (ICRP, 1991).

A kutatási terület a Soproni-hegység kristályos öve volt, melynek egyik fő közettömegét gneisz alkotja. A hegységet radiológiai szempontból érdekessé teszik az Alpi-hegységképződés során lejátszódó metamorf folyamatok, melyeket Török (2001) tanulmányozott. Ezek a plasztikus deformáció, vagy más néven milonitosodás, a Mg-metaszomatózis, a foszfát ásványosodás és egy felszín közeli folyamat, az agyagos-limonitos átalakulás. E folyamatok legtöbbször kőzet-fluidum kölcsönhatással jártak, melynek során kémiai összetételbeli változások is történtek. A dolgozat fő témája a folyamatok során létrejövő esetleges rádium, tórium, vagy radon anomáliák kialakulásának kutatása volt.

Az egyik vizsgált radon anomália a Sopronbánfalvi Geodinamikai Observatórium radonkoncentrációja, ahol a radonkoncentráció nyáron elérheti az akár 600 kBq/m^3 , 900 kBq/m^3 -es értékeket is (Várhegyi, 1991, Mentés, 2015). A hegység forrásaiban szintén mérhetünk anomális mennyiségben megjelenő radonkoncentrációt. A Csalóka-forrás vizében átlagosan 230 Bq/l radonkoncentráció alakul ki. Ez a terület azért érdekes, mert az alapkőzet a forrás területén plasztikusan deformálódott gneisz, mely radonkibocsátó képessége és urántartalma drámaian megnőhet a nem deformált alapkőzethez képest (Gundersen & Wanti, 1991).

2. Célkitűzések

A doktori munka során az alábbi célokat tűztem ki:

1. Feltérképezni a természetes radioaktivitást gneisz és csillámpala típusú kiindulási kőzetekben (metagranit, ortogneisz és csillámpala), és az ezekből

másodlagos folyamatokkal keletkezett kőzetekben. A vizsgált folyamatok a plasztikus deformáció, vagy más néven milonitosodás, Mg-metaszomatózis, foszfát ásványosodás és agyagos-limonitos átalakulás.

2. Megtudni, hogy a metamorf és a felszinközeli másodlagos folyamatok hogyan befolyásolták a kőzetek rádiumtartalmát és radonkibocsátó képességét.

3. Megvizsgálni, hogy milyen földtani oka lehet a Sopronbánfalvi Geodinamikai Observatóriumban kialakuló és mérhető kimagasló beltéri radonkoncentrációnak.

4. Megismerni a radioaktív izotópok ásványi beágyazottságát.

5. Meghatározni a Csalóka-forrás vize radontartalmának földtan eredetét, elkülönítve a talaj és a kőzet eredetét.

- megtudni, hogy mennyi a Csalóka-forrás vizének éves, átlagos radonkoncentrációja;
- vizsgálni a radonkoncentráció éves változását;
- meghatározni, hogy mi okozhatja a radon időbeli változásait;
- egy modellkalkulációt felhasználva meghatározni, hogy a forrás környéki talaj, vagy kőzet lehet-e a nagy radonkoncentráció forrása.

6. Jellemezni a Csalóka-forrást hidrológiai környezetében azzal, hogy egyéb források fiziko-kémiai és vízkémiai vizsgálatát is elvégeztem.

3. Alkalmazott módszerek

Ezen célok érdekében az alábbi feladatokat végeztem el és az alábbi vizsgálati módszereket alkalmaztam:

1. Terepi napok során körbejártam a hegység bizonyos kőfajtáit, ahol a felsorolt folyamatok hatásai tanulmányozhatók és kőzetmintákat gyűjtöttem a kiindulási és az átalakult kőzetekből. Minden területről minimum 5-10 db mintát gyűjtöttem, hogy a továbbiakban a mért eredményeket statisztikailag értelmezni tudjam.

2. Gamma spektroszkópiával, HPGe mérésekkel meghatároztam a különböző kőzettípusok radioaktív izotóp tartalmát, melyek a ^{226}Ra ; ^{232}Th és ^{40}K és ezek γ -sugárzó bomlástermékeit.

3. Radonkamrás, RAD7 radon monitorral végzett mérésekkel meghatároztam a különböző kőzettípusok radonexhalációját.

Részletesebb kőzettani vizsgálatokat végeztem egyes kőzetmintákon:

- Pásztázó elektronmikroszkópos vizsgálatokkal a radioaktivitást potenciálisan hordozó ásványok típusát és megjelenését vizsgáltam.
- MikroPIXE vizsgálatokat végeztünk a debreceni Atommagkutató Intézetben elemterképek elkészítése céljából, hogy megtudjuk az urán és tórium területi eloszlását a vizsgált vékonycsiszolaton belül.
- Szemcseméret szerinti szétválasztással, azaz száraz és nedves szitálással frakcióira bontottam három nándormagaslati mállott gneisz mintát, hogy megtudjam, melyik frakcióhoz köthető a radioaktív izotópok feldúsulása.
- A teljes mintán és a legkisebb, $<64\mu\text{m}$ -es frakción ICP OES és ICP MS vizsgálatokat végeztünk a Magyar Földtani és Geofizikai Intézetben, hogy megtudjam a kőzetek főkomponens, nyomelem-, és ritkaföldfém tartalmát, illetve ezek feldúsulási mennyiségét a legkisebb szemcseméret-frakcióban.

4. 8 db forrás radontartalmának és egyéb fiziko-kémiai paramétereinek mérését végeztem egy éven át, 9 alkalommal. Ezen kívül három alkalommal vízkémiai vizsgálatokat is végeztem egy tavaszi, egy nyári és egy őszi időszak után.

4. A kutatómunka során elért új tudományos eredmények

1. Meghatároztam a Soproni-hegység főbb közettípusainak átlagos rádiium tartalmát. A kiindulási, másodlagos folyamatoktól mentes metagránitok átlagos rádiium aktivitáskonzentrációja 43 ± 3 Bq/kg, a gneiszeké 35 ± 3 Bq/kg, a csillámpaláké 47 ± 4 Bq/kg. A Harkai-kőfejtőben emelkedett rádiium aktivitáskonzentrációt mértem három kőzetminta esetén átlagosan 84 ± 3 Bq/kg-ot, mely kétszerese az egyéb metagránitokban mérhetőnek. Ezek alapján a rádiiumot tartalmazó ásványok dúsulása már a kőzet keletkezésekor is megtörténhetett lokálisan a kőzetanyagban. A radioaktív izotópok eloszlása feltehetően nem volt homogén a Soproni-hegység területén a már kiindulási gránitban sem.

2. Kimutattam, hogy a „Csalóka-forrás típusú” plasztikusan deformált gneiszek rádiiumtartalma másfélszeresére növekedett a kiindulási kőzetekhez képest, ez az érték átlagosan 68 ± 4 Bq/kg. A rádiiumot (és tóriumot) hordozó ásványok a cirkon, monacit, allanit, xenotim és a cheralit, melyek a kőzetben szemcsék alakjában is megtalálhatók, azonban káliföldpátban lévő ereket kitöltő monacitot is azonosítottam, mely bizonyítéka a másodlagos foszfátos ásványosodásnak. PIXE mérésekkel kimutattam, hogy a monacit mellett mindig megjelenik a vas is az erek mentén. A plasztikus deformáció és a foszfát ásványosodás folyamata ezek alapján hatással volt a kőzetek rádiium tartalmának megemelkedésére, ugyanis a deformáció során megnyílt az út a foszfát ásványokat kirakó fluidum előtt.

3. Meghatároztam a főbb közettípusok átlagos radonexhalációját és (radonexhalációs képességét): a metagránitok átlagos radonexhalációja $4,7\pm 0,7$ Bq/kg ($7,7\pm 1,8\%$), a gneiszeké $3,2\pm 0,7$ Bq/kg ($8,9\pm 1,4\%$), a csillámpaláké $2\pm 0,6$ Bq/kg ($4,2\pm 1,3\%$). Kimutattam, hogy a plasztikus deformáció következtében a „Csalóka-forrás típusú” gneiszek radonexhalációja és exhalációs együtthatója is kétszeresére nőtt, amit $8,8\pm 1$

Bq/kg és $12\pm 2\%$. A plasztikus deformáció során ugyanis a kőzet szövetének irányítottságából kifolyólag megnő az egymással kapcsolatban levő pórusok térfogata, a nyírási felületek megjelenése utat biztosít a radon távozásához.

4. Meghatároztam a főbb kőzettípusok átlagos tórium tartalmát. A metagranitok tórium tartalma 13 ± 1 Bq/kg, a gneiszeké $9,4\pm 0,9$ Bq/kg, a csillámpaláké 41 ± 2 Bq/kg. A csillámpalák nagyobb (több, mint 3x-os a gneiszekhez képest) tóriumtartalmát a kiindulási anyag már eleve nagyobb tóriumtartalma okozhatja. Ugyanis a csillámpalák kiindulási anyagát képező agyagos-homokos rétegek feltehetőleg már eredetileg is gazdagabbak voltak tóriumban. A kiindulási kőzetekben a tórium inhomogén eloszlást mutathatott, így a belőlük képződött csillámpalák tórium tartalma hasonló lett.

5. A Róka házi vonalas deformált gneiszben kimutattam a plasztikus deformáció és a foszfát ásványosodás hatását a tórium tartalom megemelkedésére. A vonalas gneiszek átlagos tóriumtartalma 131 ± 3 Bq/kg, ami egy nagyságrenddel nagyobb érték, mint az egyéb gneiszekben, deformált gneiszekben mérhető. Kimutattam, hogy a fő radioaktív hordozó ásványok a cirkon, monacit, allanit, xenotim, de leggyakrabban cheralitot találtunk SEM mérések során, sokszor repedések, erek kitöltő anyagaként. PIXE mérésekkel a vas jelenlétéhez kötöm a cheralit megjelenését. Ez az eredmény azért érdekes, mert tóriumos dúsulást eddig gneiszben nem mutattak ki a Soproni-hegység területén.

6. Kimutattam, hogy a Mg-metaszomatózis során keletkezett palás leukofillit kőzet radonexhalációja és radonexhalációs együtthatója a folyamat során a feltételezések ellenére nem nőtt meg, sőt radonexhalációjuk a nullához közelít, $0,8\pm 0,5$ Bq/kg, exhalációs együtthatójuk $2,9\pm 2\%$.

7. A Sopronbánfalvi Geodinamikai Observatórium mögött található sziklafalban két agyagos-limonitos réteget azonosítottam. Meghatároztam,

hogy mállott gneisz mintáról van szó, mely emelkedett rádiumtartalommal (253 ± 6 Bq/kg) és radonexhalációval (46 ± 3 Bq/kg) rendelkezik. Ezek az értékek a hegységben mért többi kőzettípus vizsgálata alapján anomálishan nagyoknak tekinthetők. Meghatároztam vékonycsiszolatokban, hogy repedéseket kitöltő anyagként a foszfát és a vas jelenléte jelentős. Kimutattam, hogy a legkisebb, $64\ \mu\text{m}$ -nél kisebb szemcseméret frakcióban dúsul a tórium és a rádium, valamint az agyagásványok, mint a szemektit dúsulása jellemző ebben a kőzetrészen. Ez alapján a málláshoz köthető a radioaktív izotópok dúsulása. Egy egyszerű becsléssel meghatároztam, hogy ha csak ez az anyag biztosítaná az Obszervatórium belsejében mérhető nagy radonkoncentrációt, akkor kb. 2 m vastagságban kellene körbevennie a belső térfogatot, ami a természetben nagyságrendileg elképzelhető.

8. Egy modellkalkulációt létrehozva, a talaj-, és kőzetminták fajlagos minimum és maximum radonexhalációját, porozitását és sűrűségét

$$C_{pot} = \frac{M\rho}{P}$$

felhasználva () kimutattam, hogy a plasztikusan deformálódott gneiszek emelkedett radonexhalációjuknál fogva képesek a hegységben legnagyobbak számító, átlagosan 230 Bq/l radontartalmú Csalóka-forrás vizének radontartalmát biztosítani. Kimutattam, hogy a tavaszi, nyári és őszi hónapokban a csapadék erős, -0,95 és -0,91-es korrelációban áll a két mérési periódusban a radonkoncentráció mértékével, tehát a lehulló csapadék felhígítja a forrás radontartalmát. Bemutattam a Csalóka-forrás vizének területi eloszlását, legnagyobb a radonkoncentráció a forrás fő fakadási pontjában, a többi pont kisebb radonkoncentrációját a felszíni kipárolgás és a felszínen lefolyó víz hozzáadódása okozza.

9. A források közel egy éves monitorozása során meghatároztam nyolc forrás éves átlagos radonkoncentrációját. Kimutattam, hogy a források radonkoncentrációja negatív összefüggésben van a lehullott

csapadékmennyiséggel. A radonkoncentráció a pH, és a vezetőképesség között negatív kapcsolatot mutattam ki. Bemutattam, hogy azok a források rendelkeznek nagy, 100 Bq/l feletti radonkoncentrációval, melyek vize felszín alatti útja során csak gneisz és csillámpala kőzeteken halad át. A negyedidőszaki üledékekkel kapcsolatban levő források radonkoncentrációja kisebb, ugyanis ezekből kevesebb radon tud felvenni. A csak gneisz területről utánpótlódó Csalóka-forrás vize tartalmazza a legnagyobb radonkoncentrációt. Ezek az eredmények azt támasztják alá, hogy a források radonkoncentrációjukat a kőzetekből nyerik.

5. A doktori dolgozat alapján keletkezett fontosabb publikációk

Tudományos közlemények

Ágnes Freiler, Ákos Horváth & Kálmán Török (2014): ^{226}Ra activity distribution of rocks in the Sopron Mts. (West-Hungary). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. Volume: 303, Number 2.

Zsófia Kertész, Enikő Furu, Anikó Angyal, **Ágnes Freiler**, Kálmán Török & Ákos Horváth (2015): Characterization of uranium and thorium containing minerals by nuclear microscopy. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. Volume: 304, Nr. 3.

Ágnes Freiler, Ákos Horváth, Kálmán Török, Tamás Földes (2016): Origin of radon concentration of Csalóka Spring in the Sopron Mountains (West Hungary) *Journal of Environmental Radioactivity*. pp. 174-184.

Bővített konferencia publikációk

Freiler Á, Horváth Á, Török K, Sajó-Bohus L. (2012): A soproni Csalóka-forrás magas radontartalma eredetének vizsgálata – Kárpát-medencei Környezettudományi Konferencia kiadványa.

Á Freiler, Á Horváth, K Török. (2012): Radioisotopes in the metamorphic rocks of the Sopron hills - III. Terrestrial Radionuclides in Environment International Conference on Environmental Protection Konferencia kiadványa.

6. Referenciák

Gundersen, L., C., S., Randall Schumann, R., Otton, J., K., Dubiel, R., F., Owen, D., E., Dickinson, K., A. (1992): Geology of the United States, Geological Society of America, Special Paper 271.

ICRP (1991) ICRP Publication 60. Ann. ICRP 21 (1-3).

Mentes, Gy., Eper-Pápai, I. (2015) Investigation of temperature and barometric pressure variation effects on radon concentration in the Sopronbánfalva Geodynamic Observatory, Hungary. Journal of Environmental Radioactivity V:149, Pp. 64–72.

Török, K. (2001) Multiple fluid migration events in Sopron Gneisses during the Alpine high-pressure metamorphism, as recorded by bulk-rock and mineral chemistry and fluid inclusions. N Jb Miner Abh 177(1):1–36.

Várhegyi, A. (1991) Előzetes jelentés a Sopron-Bánfalvi Obszervatóriumban 1990-91-ben végzett radonmérések eredményéről. MÉV jelentés.