# Príspevok k analýze časových radov objemovej aktivity radónu v pôdnom vzduchu

# Andrej Mojzeš & René Putiška

Katedra aplikovanej a environmentálnej geofyziky, Prírodovedecká fakulta, Univerzita Komenského v Bratislave, Mlynská dolina G, 84215 Bratislava; mojzes@fns.uniba.sk

AGEOS

# Contribution to analysis of time courses of radon volume activity in soil air

**Abstract:** The article is devoted to evaluation of dependence between measured values of <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activity in soil air and some meteorological parameters (temperature and humidity of atmospheric air) in two annual cycles from 3.2.2000 to 30.10.2001. The year around evaluation of observed dependencies by means of linear regression is supplied by more detailed visual correlation of time courses of soil <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activity and time courses of atmospheric temperature and humidity in the form of their polynomial fits. The correlation shows time lag of approximately 2–3 months between soil <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activity curves and atmospheric temperature curve as result of complex interactions between both environments. A tight dependence between radon content in pore space of soil cover and meteorological parameters of atmospheric environment in dependence on weather changes in a year cycle was documented.

Key words: volume activity of <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn, soil air, annual variations of soil <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn, temperature and humidity of atmospheric air

# 1. ÚVOD

Prítomnosť a množstvo oboch najbežnejších rádioaktívnych izotopov plynného radónu (<sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn) v pôdnom vzduchu pórových priestorov je dané hlavne obsahom ich pevných materských rádioizotopov rádia (<sup>226</sup>Ra a <sup>224</sup>Ra) v okolitej minerálnej mriežke. Hlavný smer pohybu plynného radónu z miesta jeho vzniku procesom rádioaktívneho rozpadu rádia, je nahor k zemskému povrchu cez póry, pukliny, praskliny, poruchy a rozvoľnené alteračné a tektonické zóny. Množstvo radónu v pôdnom vzduchu sa zvyčajne meria in situ na základe odberu vzoriek pôdneho vzduchu z pripovrchového horizontu do hĺbky cca 1 m a závisí vo významnej miere od zmien teploty pôdy, obsahu pôdnej vlhkosti a objemu voľných pórov, čo silne korešponduje s variáciami meteorologických parametrov atmosférického vzduchu. Tieto zmeny sú príčinami denných a ročných variácií objemovej aktivity <sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu.

Úlohou je podať štatistické zhodnotenie nameraných údajov za roky 2000–2001 a zistiť najvýznamnejšie závislosti medzi hodnotou objemovej aktivity <sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu a meteorologickými parametrami.

# 2. POUŽITÉ METÓDY A ŠTUDOVANÁ LOKALITA

Opakované merania objemovej aktivity <sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu boli realizované manuálne na jednom mieste z hĺbky 0,8 m raz týždenne v období od 3. 2. 2000 do 30. 10. 2001. Týždenný súbor bol väčšinou reprezentovaný päticou nameraných hodnôt z okamžitých meraní vzoriek pôdneho vzduchu odoberaných z tej istej sondy v 10–13 minútových intervaloch. Celotýždňové meranie tak pokrývalo približne 1,5-hodinový časový úsek dňa zvyčajne medzi 8. a 10. hodinou dopoludnia.

Na meranie bol používaný prenosný impulzný scintilačný radónový detektor LUK-3R (SMM Praha) pracujúci na báze vymieňateľných Lucasových komôrok.

V tých istých časových úsekoch boli pomocou prenosnej meteorologickej stanice zaznamenávané aj teplota a vlhkosť atmosférického vzduchu na lokalite.

Všetky spracované údaje boli získané z jediného meracieho miesta – sondy inštalovanej v areáli Prírodovedeckej fakulty Univerzity Komenského v Bratislave. Lokalita leží v jz. časti mesta na jz. orientovanom svahu výbežku pohoria Malých Karpát s jemným sklonom do terasy rieky Dunaj. Podložie je budované zmesou svahových hlinitých sedimentov a piesčitoštrkovitými sedimentmi riečnych terás (Polák et al., 2011). Najvrchnejší horizont je heterogénnou zmesou stavebnej navážky. Podiel jemnozrnných ílovitých častíc do hĺbky cca 1 m je približne 49 %, čo predstavuje prostredie so strednou priepustnosťou pre pôdny radón (Mojzeš, 2004).

## **3. VÝSLEDKY PRÁCE A DISKUSIA**

V období od 3. 2. 2000 do 30. 10. 2001 bolo realizovaných celkom 609 meraní počas 81 dní (80 týždňov). Časové priebehy nameraného obsahu izotopu <sup>222</sup>Rn, resp. <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu sú znázornené na obr. 1, resp. 2 v dolnej časti (veličina objemová aktivita <sup>222</sup>Rn, resp. <sup>220</sup>Rn v kBq·m<sup>3</sup>). Fitovacia polynomická krivka (hrubá čiara) preložená nameranými hodnotami dobre zvýrazňuje ročný priebeh zmien (variácií) oboch izotopov v zhode s opisom v odbornej literatúre a starších prácach (Matolín & Prokop, 1992; Holý et al., 1995; Mojzeš, 2004, 2007; Mojzeš & Putiška, 2006).



Obr. 1. Časové priebehy objemovej aktivity <sup>222</sup>Rn v pôdnom vzduchu a teploty a vlhkosti atmosférického vzduchu na lokalite. Fig. 1. Time courses of <sup>222</sup>Rn volume activity in soil air and temperature and humidity of atmospheric air in study area.

Krivka objemovej aktivity<sup>222</sup>Rn (Obr. 1, dole) začína prudko narastať zo svojho minima začiatkom februára 2000 do malého lokálneho maxima na prelome februára a marca 2000 ako výsledok krátkeho obdobia intenzívneho topenia snehovej pokrývky. Variabilita meraných hodnôt je najvyššia s najvyššími nameranými hodnotami objemovej aktivity<sup>222</sup>Rn počas celého ročného obdobia. Podobný rys je možné pozorovať vo februári 2001, ale s nižšou intenzitou a bez lokálneho maxima. Obidve časti indikujú obdobia s výraznými zmenami v pórovom priestore pôdy v dôsledku sezónnych zmien. Zvyšok meraných hodnôt vykazuje nižšiu variabilitu a vytvára krivku vlnového tvaru s dvomi maximami v rovnakých časových pozíciách (september/október 2000 a 2001) s málo sa líšiacimi amplitúdami (cca 12 kBq·m<sup>3</sup> a 15 kBq·m<sup>3</sup>). Keby nebolo prítomné spomínané malé maximum vo februári/marci 2000, fitovacia polynomická krivka by mala vlnový tvar s dvomi spomínanými maximami a dvomi minimami v oboch februároch na úrovni cca 9 kBq·m<sup>3</sup>. V porovnaní so staršími prácami (Holý et al., 1995; Mojzeš, 2004, 2007; Mojzeš & Putiška, 2006) je zaujímavá neprítomnosť letného maxima v období letných dažďov máj-júl. Iba zopár dažďových dní s vysokými nameranými hodnotami je možné vidieť (napr. 27.7.2001).

Krivka objemovej aktivity<sup>220</sup>Rn (Obr. 2, dole) má priebeh jednoduchší, ale tiež vytvára podobne ako krivka<sup>222</sup>Rn vlnový priebeh s minimálnymi hodnotami v mesiacoch február–marec 2000 a 2001, a maximami v obdobiach prelomu septembra a októbra 2000 a v auguste 2001).

Pre možnosť porovnania časových priebehov objemových aktivít<sup>222</sup>Rn a<sup>220</sup>Rn s ich pravdepodobnými príčinami, uvádzame v hornej časti obr. 1 a 2 časové priebehy snímaných parametrov atmosférického vzduchu, t.j. teploty a vlhkosti, preložené fitovacími polynomickými krivkami (hrubé krivky). Ich súvis je dobre známy zo starších prác (napr. Matolín & Prokop, 1992; Holý et al., 1995; Mojzeš, 2004, 2007; Mojzeš & Putiška, 2006). Tlak atmosférického vzduchu nebol snímaný a jeho vplvv v študovanom období nebol analyzovaný, nakoľko z citovaných prác vyplýva jeho najmenší vplyv na variácie objemovej aktivity<sup>222</sup>Rn a<sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu v ročnom cykle v porovnaní s teplotou a vlhkosťou atmosférického vzduchu (Matolín & Prokop, 1992; Mojzeš, 2004, 2007; Mojzeš & Putiška, 2006). Naopak, jeho podstatný vplyv na variácie objemovej aktivity<sup>222</sup>Rn v pôdnom vzduchu dokumentuje Holý et al. (1995) počas denného cyklu, čo nebolo objektom nášho záujmu.

Pre úplnosť podávame v tab. 1 formou koeficientov lineárnej korelácie závislosť objemovej aktivity <sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn na jednotlivých meteorologických parametroch.

Zo štatistického hľadiska sú hodnoty koeficientov lineárnej korelácie v tab. 1 nízke a závislosti by bolo možné vyhodnotiť ako štatisticky nevýznamné a hľadať príčiny ročných variácií objemových aktivít <sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu niekde inde. Ale už z predchádzajúceho vizuálneho zhodnotenia časových priebehov kriviek objemových aktivít <sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu a ich vizuálnym porovnaním s časovým Obr. 2. Časové priebehy objemovej aktivity <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu a teploty a vlhkosti atmosférického vzduchu na lokalite. Fig. 2. Time courses of <sup>220</sup>Rn volume activity in soil air and temperature and humidity of atmospheric air in study area.



priebehom kriviek teploty a vlhkosti atmosférického vzduchu (hlavne prostredníctvom ich polynomických fitov) vyplýva, že príčinou nízkej lineárnej korelácie je časový posun medzi nimi. Ten je zvlášť dobre viditeľný ako časové zaostávanie objemovej aktivity za teplotou. Jednoznačnejší je v prípade <sup>220</sup>Rn (Obr. 2) a predstavuje v oboch rokoch rovnaký interval zaostávania o cca 2 mesiace. Dobre čitateľný je však aj v prípade <sup>222</sup>Rn (Obr. 1), kde predstavuje približne 2 mesiace v roku 2000 a asi 3 mesiace v roku 2001.

Domnievame sa, že príčinou zisteného časového posunu medzi meteorologickými parametrami atmosférického prostredia a objemovou aktivitou <sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn v pôdnom prostredí sú zložité procesy interakcie týchto systémov. Akumulácia tepla slnečného svitu pôdou počas horúcich letných mesiacov je vystriedaná uvoľňovaním tepla pôdou počas nasledujúcich chladnejších jesenných mesiacov, čo má za následok konvekciu teplého pôdneho vzduchu do chladnejšej atmosféry, a tým výnos radónu z hlbších partií horninového prostredia do pripovrchovej pôdnej vrstvy, kde jeho zvýšené hodnoty registrujeme v neskorých letných a skorých jesenných mesiacoch.

## 4. ZÁVER

Výsledky dokumentujú úzku súvislosť medzi obsahom radónu v pórovom priestore pôdneho pokryvu a meteorologickými parametrami vzdušného atmosférického prostredia v závislosti na zmenách počasia v priebehu roka. Tab. 1 podáva koeficienty lineárnej korelácie medzi skúmanými veličinami objemovej aktivity<sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu a teplotou a vlhkosťou atmosférického vzduchu na študovanej lokalite v priebehu celého skúmaného obdobia od 3.2.2000 do 30.10.2001. Detailnejšia vizuálna analýza časových priebehov meraných veličín na obr. 1 a 2 za pomoci ich polynomických fitovacích kriviek ukazuje, že príčinou nízkej lineárnej korelácie je časové zaostávanie priebehu objemovej aktivity pôdneho<sup>222</sup>Rn i<sup>220</sup>Rn za priebehom teploty atmosférického vzduchu o cca 2-3 mesiace. Potvrdenie a vysvetlenie príčin a dynamiky zistených procesov interakcie pôdneho a atmosférického prostredia si vyžaduje meranie a zhodnotenie ďalších ročných cyklov meraní a porovnanie časových hraníc zistených posunov. Výsledky ukazujú potrebu porovnávať namerané objemové aktivity<sup>222</sup>Rn a <sup>220</sup>Rn v pôdnom vzduchu s teplotou a vlhkosťou nielen atmosférického vzduchu, ale tiež pôdneho vzduchu do hĺbky odberu jeho vzorky.

**Poďakovanie:** Tento príspevok bol vypracovaný v rámci riešenia projektu VEGA 1/0468/10 "Priestorový a časový prejav nenasýtenej zóny v geofyzikálnych poliach", VEGA 1/0747/11, VEGA 1/0095/12, VEGA 2/0067/12 a projektu APVV-0194-10.

Tab. 1. Koeficienty lineárnej korelácie medzi meranými veličinami v celom meranom období 3.2.2000–30.10.2001 a jednotlivých rokoch. Vysvetlivky:  $a_v(^{222}Rn)$  – objemová aktivita  $^{222}Rn$  v pôdnom vzduchu [kBq·m<sup>3</sup>];  $a_v(^{220}Rn)$  – objemová aktivita  $^{220}Rn$  v pôdnom vzduchu [kBq·m<sup>3</sup>]. Tab. 1. Coefficients of linear correlation between measured variables for whole measured period 2000-02-03–2001-10-30 and single years. Legend:  $a_v(^{222}Rn)$  –  $^{222}Rn$  volume activity in soil air [kBq·m<sup>3</sup>];  $a_v(^{220}Rn)$  –  $^{222}Rn$  volume activity in soil air [kBq·m<sup>3</sup>];  $a_v(^{220}Rn)$  –  $^{220}Rn$  volume activity in soil air [kBq·m<sup>3</sup>].

3. 2. 2000 - 30. 10. 2001	$a_v(^{222}Rn)$	$a_V(^{220}Rn)$
Teplota atmosférického vzduchu Temperature of atmospheric air	0,21	0,41
Vlhkosť atmosférického vzduchu Humidity of atmospheric air	0,09	0,13
Počet meraní Number of measurements		609
3. 2. 2000 - 20. 12. 2000	$a_v(^{222}Rn)$	$a_v(^{220}Rn)$
Teplota atmosférického vzduchu Temperature of atmospheric air	0,00	0,27
Vlhkosť atmosférického vzduchu Humidity of atmospheric air	-0,06	0,19
Počet meraní Number of measurements		261
11. 1. 2001 - 30. 10. 2001	$a_v(^{222}Rn)$	$a_v(^{220}Rn)$
Teplota atmosférického vzduchu Temperature of atmospheric air	0,32	0,52
Vlhkosť atmosférického vzduchu Humidity of atmospheric air	0,15	0,10
Počet meraní Number of measurements		348

### References

#### -----

- Holý K., Böhm R., Polášková A. & Štelina J., 1995: Variations of <sup>222</sup>Rn concentration in outdoor atmosphere and in soil air. *In:* Nikodemová D. (Ed.): Conference Proceedings of 19<sup>th</sup> Radiation Hygiene Days, Jasná pod Chopkom, 129-131.
- Matolín M. & Prokop P., 1992: Variation of radon volume activity in soil air in a year climatic cycle. Radon investigations in Czechoslovakia III., Geological Survey, Prague, 1-5.
- Mojzeš A., 2004: Time courses of soil radon volume activity in selected areas of Bratislava. *Contributions to Geophysics & Geodesy*, 34, 4, 405-412.
- Mojzeš A., 2007: Contribution to analysis of time courses of soil radon concentration (years 1997–1998). *Contributions to Geophysics & Geodesy*, 37, 1, 29-42.
- Mojzeš A. & Putiška R., 2006: Contribution to analysis of time courses of soil radon concentration (year 2004). *Contributions to Geophysics & Geodesy*, 36, 1, 49-62.
- Polák M., Plašienka D., Kohút M., Putiš M., Bezák V., Filo I., Olšavský M., Havrila M., Buček S., Maglay J., Elečko M., Fordinál K., Nagy A., Hraško Ľ., Németh Z., Ivanička J. & Broska I., 2011: Geologická mapa Malých Karpát

(Regionálne geologické mapy Slovenska 1:50 000). MŽP SR a Štátny geologický ústav Dionýza Štúra, Bratislava.

**Summary:** The presence of both most common radioactive isotopes of radon gas (<sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn) in the soil air inside the pore spaces is mainly regulated by content of their solid parent radioisotopes of radium (<sup>226</sup>Ra or <sup>224</sup>Ra respectively) in surrounding mineral matrix. The main direction of radon gas movement from the point of its appearance through the process of nuclear disintegration, is upward to the ground surface via pores, fissures, joints, clefts and loosened fault zones. The amount of radon in soil gas is usually measured in situ by soil air sampling from the subsurface layer up to depth of about 1 meter. It depends to an important extent on changes of soil temperature, moisture content and free pore spaces volume which strongly correspond to variations of meteorological parameters of atmospheric air. Those are reasons of diurnal and seasonal variations of soil radon volume activity.

The target of this article is to give statistical assessment of measured data within the years 2000–2001 (exactly from 3.2.2000 to 30.10.2001) and to find out the most important dependencies between the values of <sup>222</sup>Rn, resp. <sup>220</sup>Rn volume activity in soil air and single meteorological parameters.

Monitoring measurements of <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activity in soil air were carried out manually in single place from the depth of 0.8 m once per week. This kind of weekly statistical file (set) is mostly represented by 5 values (quintuplet) acquired by immediate measurements of soil air samples taken from the same probe in 10–13 minutes intervals. Whole week's measurements were covering in this manner a time period of approx. 1.5 hours long and usually were carried out between 8:00 and 10:00 in the morning. The portable radon detector LUK-3R (SMM – Prague) was used to perform the measurements. At the same time intervals also temperature and humidity of atmospheric air were registered.

All processed values were taken from one measuring station – probe installed inside the Faculty of Natural Sciences campus. The area lies on the southward oriented slope of the Malé Karpaty Mts. with easy gradient to the Danube River terrace in the SW part of Bratislava. The basement is built by mixture of slope loams and sandy-gravel old terrace sediments (Polák et al., 2011). But the uppermost layer is a heterogeneous building made-up ground. The clay particles content is approx. 49 % what means a middle permeable environment for radon gas moving (Mojzeš, 2004).

There were 609 measurements carried out during 81 days (80 weeks) in the period from 3.2.2000 to 30.10.2001. Time courses of measured content of <sup>222</sup>Rn, resp. <sup>220</sup>Rn isotopes in soil air are presented in Figs. 1 and 2 in bottom part (the <sup>222</sup>Rn, resp. <sup>220</sup>Rn volume activity in kBq·m<sup>-3</sup>). The polynomial curve (bold line) fitted through measured values underlines seasonal course of both isotopes changes (variations) in good correlation with description in research literature and former works (Matolín & Prokop, 1992; Holý et al., 1995; Mojzeš, 2004, 2007; Mojzeš & Putiška, 2006).

The <sup>222</sup>Rn curve (Fig. 1, bottom) starts very steeply from minimum in the beginning of February 2000 to small local maximum (February/ March 2000) as a result of short period of intensive snow cover melting. The variability of measured values is the highest one with the highest measured values of <sup>222</sup>Rn volume activity in whole annual range. Similar feature can be seen in February 2001 but with lower intensity and without local maximum. Both parts could indicate periods with extensive changes in soil pore spaces due to seasonal changes. The rest of measured values shows lower variability and forms wave fitted curve with two maxima at the same time positions (September/October 2000 and 2001) with slightly different amplitudes (approx. 12 kBg·m<sup>-3</sup> and 15 kBg·m<sup>-3</sup>). Finally, if the small maximum in February/March 2000 is not present the fitted curve is wave line with two mentioned maxima and two minima in Februaries at approx. 9 kBq·m<sup>-3</sup> level. It is interesting from comparison with former works (Holý et al., 1995; Mojzeš, 2004, 2007; Mojzeš & Putiška, 2006) an absence of summer maximum in rainy period May-July. Only few rainy days with high measured values can be seen (e.g., 27.7.2001).

The <sup>220</sup>Rn course (Fig. 2, bottom) is more uniform but forms very similar to <sup>222</sup>Rn wave line with minimum values in months February–March 2000 and 2001 and with maximum in September/October 2000 and in August 2001).

For the possibility to compare the time courses of radon volume activity with their probable reasons there are also presented the time courses of observed atmospheric air parameters, i.e. temperature and humidity in the top of Figs. 1 and 2 together with their polynomial fits (bold lines). Their dependence is well known from former works (e.g., Matolín & Prokop, 1992; Holý et al., 1995; Mojzeš, 2004, 2007; Mojzeš & Putiška, 2006). The pressure of atmospheric air was not monitored and its influence was not analyzed in the study period because it follows from cited works that this influence on soil <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activity in yeararound cycle is the smallest one in comparison with temperature and humidity of atmospheric air (Matolín & Prokop, 1992; Mojzeš, 2004, 2007; Mojzeš & Putiška, 2006). On the other hand, very important influence of the atmospheric pressure on soil <sup>222</sup>Rn volume activity variations in day-around cycle is documented in work Holý et al. (1995) but this was not subject of our study.

For completeness the dependence of the <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activity on single meteorological parameters by the coefficients of linear correlation is presented in Tab. 1.

Values of coefficients of linear correlation presented in Tab. 1 are very low from the statistical point of view and dependencies could be evaluated as statistically not important. However, it follows from previous visual evaluation of time courses of <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activity in soil air and from their visual comparison with time courses of temperature and humidity of atmospheric air (mainly through their polynomial fits) that the right reason of low linear correlation is time lag between them. The time lag is strongly evident as time delay of the volume activity curve behind the temperature curve. It is more unique in the case of <sup>220</sup>Rn (Fig. 2) and represents the same lag interval of approx. 2 months length in both years. But it is also good readable in the case of <sup>222</sup>Rn (Fig. 1) with time lag length of approx. 2 months in year 2000 and of approx. 3 months in year 2001.

We think the reason of time lag between <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activities in soil air and meteorological parameters of atmospheric environment is based on complex processes of interactions of these systems. Accumulation of sun heat by soil during hot summer months is changed to releasing of heat from soil in following colder autumn months. This results in convection of warm soil air into colder atmosphere and in carrying of radon gas out from deeper parts of rock environment to nearsurface soil layer where we can register its higher values during late summer and early autumn months.

The results document a close connection between radon content in pore space of soil cover and some meteorological parameters of aerial atmospheric environment in dependence on weather changes in a year cycle. Tab. 1 presents the coefficients of linear correlation between observed variables during whole year-around cycle from 3.2.2000 to 30.10.2001. More detailed visual analysis of time courses of measured variables in Figs. 1 and 2 through their polynomial fits comparison shows that the reason of low linear correlation lays in time lag of soil <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activity curves behind the atmospheric temperature curve of approx. 2-3 months length. Confirmation and explanation of reasons and dynamics of observed interaction processes between soil and atmospheric environments requires additional measurements and evaluation of another year-around cycles. The results show the need to compare the measured <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn volume activities in soil air with temperature and humidity not only of atmospheric air but also in soil layer down to the depth of soil air sampling.