

A talajok cézium-137 koncentrációja Pest megyében

*Szabó Katalin Zsuzsanna¹, Udvardi Beatrix¹, Horváth Ákos², Bakacsi Zsófia³,
Pásztor László³, Szabó József³, Laczkó László⁴, Szabó Csaba¹*

¹Eötvös Loránd Tudományegyetem, Közvetlen és Geokémiai Tanszék, Litoszféra Fluidum Kutató Laboratórium
1117 Budapest, Pázmány Péter sétány 1/C.

²Eötvös Loránd Tudományegyetem, Atomfizikai Tanszék
1117 Budapest, Pázmány Péter sétány 1/A.

³MTA Agrártudományi Kutatóközpont, Talajtani és Agrokémiai Intézet, Környezetinformatikai Osztály
1022 Budapest, Herman Ottó út 15.

⁴CEMKUT, Cementipari Kutató-fejlesztő Kft.
1034 Budapest, Bécsi út 122-124.

1992-óta működik hazánkban egy talajvédelmi megfigyelő hálózat, a Talajvédelmi Információs és Monitoring Rendszer (TIM). Ennek keretében az ország talajaira reprezentatív pontokon állnak rendelkezésre talajminták, amelyek kiváló lehetőséget biztosítanak a ¹³⁷Cs talajban történő előfordulásának az eddigieknél részletesebb vizsgálatára. Ebben a munkában 45 Pest megyében található TIM pont talajmintáiban határoztuk meg a ¹³⁷Cs koncentrációját gamma-spektroszkópia segítségével. Egy az eddigieknél részletesebb térképen jelentettük meg a ¹³⁷Cs térbeli eloszlását. Egy kiválasztott talajszelvényben megállapítottuk, hogy a ¹³⁷Cs eloszlása a mélységgel gyorsan csökken, vertikális migrációja lassú. Ezt a lassú mozgást az anyagvizsgálati eredményeink alapján a talaj agyagásvány tartalma, elsősorban a kaolinit és az illit jelenléte okozza [1].

Bevezetés

Környezetünkben a ¹³⁷Cs radioaktív izotóp jelenlétét antropogén tevékenységek idézték elő. Az első globális forrásnak az 1945 – 1963 között végzett léghő nukleáris fegyvertesztetek tekinthetők [2]. A kísérleti robbantások eredményeképpen a radioaktív nuklidok a sztratoszférába kerültek, majd a földfelszínre kiülepedve viszonylag egységes regionális képet rajzoltak ki [3]. Ezt az eloszlást Európában a csernobili atomerőmű baleset átalakította. Az atomerőmű 4. reaktorblokkjának aktív zónájában történt gőzrobbanás és tűz hatására az atmoszférába nagy koncentrációban kerültek ki különböző radioaktív izotópok különféle fiziko-kémiai formákban [4, 5]. A légmozgás hatására a radioaktív felhő szétterjedt, az elpárolgott illékony elemek (mint a cézium is,) Európa jelentős részét érintették az akkori időjárási körülmények függvényében. A csapadék jelenléte és intenzitása jelentősen befolyásolta a ¹³⁷Cs kihullását, mivel nagy része nedves ülepedéssel jutott a troposzférából a földfelszínre. Magyarországon 86 ponton végzett ¹³⁷Cs aktivitás-mérés alapján az ország északi és északnyugati területein kissé nagyobb mértékű volt a kiülepedés [3]. Ezt a különbséget mások is megerősítették, további 19 mérési ponttal kiegészítve a ¹³⁷Cs koncentráció adatokat [6].

A ¹³⁷Cs felezési ideje 30,07 év, ezért évtizedekig megtalálható a talajban. A vegetáció részvételével zajló transzportfolyamatok révén ökológiai hatást is kifejt [7]. Ebből a szempontból a gyökérszónában lévő ¹³⁷Cs mennyisége

és a felső rétegekben történő mozgásának meghatározó elemei a fontosak. A ¹³⁷Cs mennyiségét elsősorban a kihullás intenzitása határozza meg, de emellett a vertikális mozgás is fontos szerepet játszik a gyökérszónában maradó mennyiség szempontjából. Az egyik legfontosabb tényező, ami a cézium mobilitását meghatározza a talajban, az agyagtartalom, ami az eddigi tapasztalatok alapján a cézium megkötésére alkalmas. A laboratóriumi kísérletek alapján a cézium megkötésében elsősorban a rétegszilikátok, úgymint vermikulitok, illitek és csillám ásványok játszanak szerepet. Még akkor is, ha ezek az ásványok a talajban előforduló agyag csak egy kis tömegét alkotják, nagy szorpciós képességük miatt mégis óriási jelentőségük van a cézium talajbeli visszatartásában [8]. A ¹³⁷Cs izotópot a káliumban gazdag agyagásványok különböző módon köthetik meg, mivel különböző kötési helyekkel rendelkeznek (felület, rétegek közötti tér, szélek), amelyek egymástól eltérő szorpciós képességgel bírnak egy-egy elemre vonatkoztatva. A legnagyobb kation szelekció az ún. síkfelületi széleken (frayed edge sites, FES) történik. Ezek a szorpciós helyek csak a kis hidratációs képességű és egy vegyértékű kationok (K, Cs, Rb stb.) számára érhetőek el. Az itt lejátszódó verseny során a cézium a káliumot helyettesítheti, mivel geokémiailag nagyon hasonlóak. Ez a folyamat különösen a mállott 2:1 rétegszilikátok (ezekben 2 tetraéderekből álló réteg között egy oktaéderekből álló réteg található, pl. illit) FES helyein jelentős [9]. A cézium mozgása ezen kívül más fizikokémiai faktorok kombinációjától is függ, mint például a talaj típusa, a pH, a talaj szerves szén tartalma, a biológiai aktivitás, és a

szerves anyag tartalom bizonyítottan csökkenti a cézium megkötődését. [10]

A ^{137}Cs mozgásának sebességét számos különféle modellel próbálták már leírni, amelyek azt sejtetik, hogy a migráció nagyon változó lehet. A leginkább alkalmazott megoldás a szorpcióval bővített konvekciós-diffúziós modell, amelyben a ^{137}Cs mélységprofiljának időbeli változása három paraméterrel jellemezhető: a felszíni kihullás nagyságával, az effektív diffúziós együtthatóval és az effektív konvekciós sebességgel. Ezek az effektív paraméterek magukban foglalják a retardációs állandót, ami két körülmény függvénye: a ^{137}Cs folyadék és szilárd fázisban mérhető koncentrációi közötti szorpció egyensúlyi állandó (K_d) és a víz átlagos térfogatszázaléka a talajban. Ezen modell elméleti megalapozása P. Bossew és munkatársai [11] munkájában olvasható. A modell használhatóságát mutatja az irodalomban 2009-ig bemutatott mérési eredmények átfogó bemutatása, ami G. Kirchner és munkatársai tanulmányában található meg [12].

Szerbin Pével munkatársaival és Bokori Edit munkatársaival ezzel a modellel írták le különböző magyarországi talajszelvényekben a ^{137}Cs mozgását, olyan kezdőfeltétellel, hogy a kihulláskor a talaj felszínére adott mennyiségű ^{137}Cs kerül, és ez zérus fluxussal indul neki a függőleges migrációnak [6, 11]. Egy alternatív megoldást jelent egy azóta megjelent eredmény, mely szerint a kihullás impulzusjellegét is figyelembe lehet venni a konvekciós-diffúziós modell egy más peremfeltétellel kiszámolt megoldása esetén. Ennek hátránya azonban, hogy a migráció első éveiben nem ad pontos képet a mélységfüggésről [11]. Mindkét modell segítségével jelezni lehet a ^{137}Cs koncentráció eloszlását évtizedekre előre.

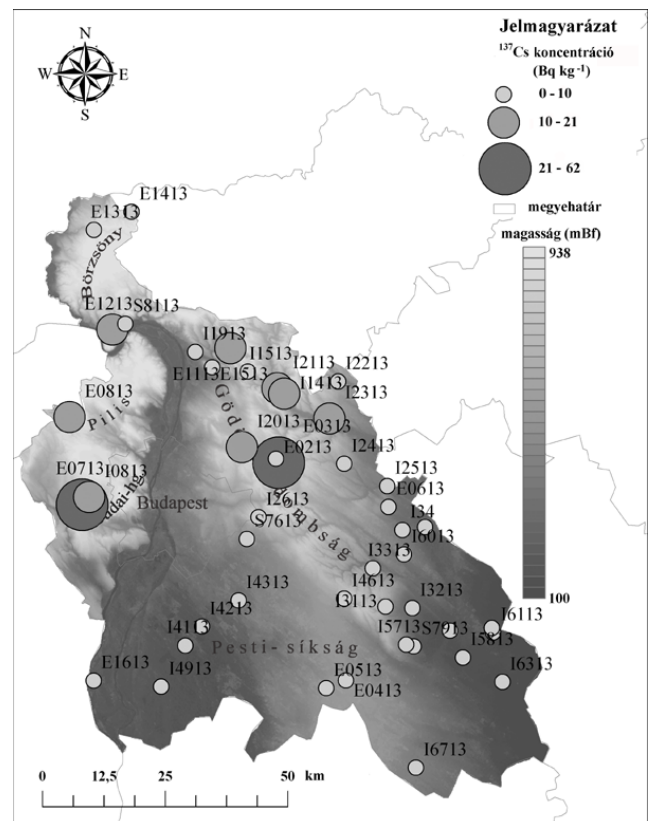
Munkánk során a ^{137}Cs térbeli eloszlásának tanulmányozásához öt mélységtartományból vizsgáltunk talajmintákat és készítettük el Pest megye egy, az eddigieknél részletesebb ^{137}Cs térképét, mint a korábbi, ugyanezre a területre készült ^{137}Cs térkép [3]. A területi eloszlást egy, az átlaghoz viszonyítottan nagy ^{137}Cs koncentrációjú mintavételi hely részletesebb tanulmányozásával is kiegészítettük. Itt a ^{137}Cs mélységprofilját megállapítottuk, a vertikális migrációs sebességet meghatároztuk. Az átfogó tanulmányokban [6, 12] bemutatott sebességekhez viszonyítva kis migrációs sebességet tapasztaltunk. Ennek okát is vizsgáltuk anyagvizsgálati eszközökkel, így a talaj felső részének aggregátum-frakcióiban mért ^{137}Cs koncentrációja és agyagtartalma közti kapcsolatot is megvizsgáltuk. A cézium vertikális eloszlását korábbi Pest megyei eredményekkel összevetettük [6, 13], hogy jellemezzük a mélységprofil időbeli alakulását és teszteljük a migrációs modellek használhatóságát.

Talajminták és vizsgálati módszerek

Talajminták

A Talajvédelmi és Információs Monitoring Rendszer (TIM) keretében 1992-ben 68 bolygatatlan szelvényt mélyítették Közép-Magyarország területén, amelyek közül 45 mintavételi pontot választottunk ki 2008-ban a gamma-spektrometriai mérések elvégzése céljából. Ezen pontok térbeli eloszlását az 1. ábrán mutatjuk be. A mintavételezések során minden TIM pontban egységes mintázási módszerrel 0-30, 30-60, 60-90, 90-120 és 120-150 cm mélységekből átlagmintákat vettek és

számos talajtani paramétert pontosan meghatároztak, ezért a közép-magyarországi régiót jól reprezentáló mintaegyüttesen tudtuk nyomon követni a ^{137}Cs térbeli eloszlását.



1. ábra: A méréseink alapján szerkesztett Cs-térkép és a tanulmányozott terület térképe a topográfiai viszonyok feltüntetésével. A körök origói a Talajvédelmi és Információs Monitoring Rendszer (TIM) mintavételi helyeit mutatják. A mért ^{137}Cs koncentrációk nagyságát a körök sugara és a kitöltés színe jelzi, a koncentrációk a mintavételezés évére, azaz 1992-re korrigáltak.

Ezt a mintaegyüttest kiegészítettük az egyik TIM pont (jele az 1. ábrán: E0713A, talajtípusa barna erdőtalaj) közvetlen közelében (10 méteres távolságon belül) mélyített két talajszelvény vizsgálatával. Az első minta vételezése azt a célt szolgálta, hogy megvizsgáljuk, hogy az egyes szemcseméret frakciókban a cézium és az agyag vajon hasonlóan található-e meg a megkötődés eredményeképpen. A továbbiakban erre a pontra E0713A jelöléssel hivatkozunk. A begyűjtött mintát szobahőmérsékleten szárítottuk, majd Fritsch-típusú rázógépen száraz szitálással hét aggregátum-mérettartományra (<0,063 mm; 0,063-0,125; 0,125-0,25; 0,25-0,5; 0,5-1; 1-2; >2 mm) különítettük el. Nedves szitálást azért nem alkalmaztunk, mert bár ennek során az aggregátumok egyedi szemcsékké esnek szét, de a cézium egy része kimosódhat a mintából. A száraz szitálás hátránya pedig az, hogy a kisebb szemcsék a nagyobb szemcsékben vagy azok felületén maradnak. Így a mindig nagyon kis szemcseméretű agyagfrakció egy része a nagyobb szemcseméretű szűrővel leválasztott frakcióban is jelen lesz. A másik szelvény mélyítésének célja az E0713 jelzésű helyen a ^{137}Cs vertikális migrációjának és időbeli változásának nyomon követése volt. Itt egy 60 cm mély talajszelvényt mélyítettünk és ebből mintáztunk 15 szintben, sűrű mintavételi közzel (0-3, 3-8, 8-12, 12-16, 16-20 cm stb.) 2009 szeptemberében.

Analitikai módszerek

Gamma spektroszkópia

A minták ^{137}Cs koncentrációit GC1520-7500SL típusú HPGe detektorral (energia felbontás 1,8 keV 1 MeV-nél, kimutatási határ (DL) kb. $0,5 \text{ Bq kg}^{-1}$) határoztuk meg. A talajmintákat (tömegük: a TIM pontoknál 10-42 g, E0713A és B mintáknál kb. 200 g) henger alakú alumínium kamrákban helyeztük a detektor fölé. Minden minta esetében a mérés ideje legalább 16 óra volt. A ^{137}Cs koncentrációját a spektrum 661 keV energiájához tartozó csúcsa alapján számoltuk [14]. A detektálás hatásfokát Monte-Carlo szimulációval határoztuk meg. A TIM pontok esetében a ^{137}Cs koncentráció értékeket a mintázás dátumára (1992) visszaszámolva adtuk meg.

Röntgen-pordiffrakció

Az E0713A szelvényből származó minta ásványos összetételének meghatározása Philips PW 3710 típusú röntgen-diffraktométerrel történt ($\text{CuK}\alpha$, $\lambda=1,5417 \text{ \AA}$) a $0-70^\circ$ 2θ tartományban. A fő ásványfázisok azonosításához a Bruker DiffracPlus™ szoftvercsomag EVA programját és röntgen-diffrakciós ásvány adatbázist használtunk fel [15].

Termogravimetria

Az E0713A szelvény mintájának aggregátum mérettartományában (frakcióiban) az agyagtartalmat termikus analízissel határoztuk meg. A termoanalitikai görbék felvételére egy MOM Q-1500D Derivatograph típusú szimultán (T, TG, DTG, DTA) műszert alkalmaztunk. Dinamikus körülmények között $10^\circ\text{C}/\text{perc}$ felfűtési sebességgel (1000° -ig) és levegő atmoszférában 500 mg mintából regisztráltuk a tömegvesztést. Szenderként kiégetett Al_2O_3 mintát használtunk. Az agyagásvány-tartalmat az $545-575^\circ\text{C}$ maximumoknál lejátszódott tömegvesztés alapján származtattuk, mert ebben a tartományban távozik el a szerkezetileg kötött víz az agyagásványokból [16].

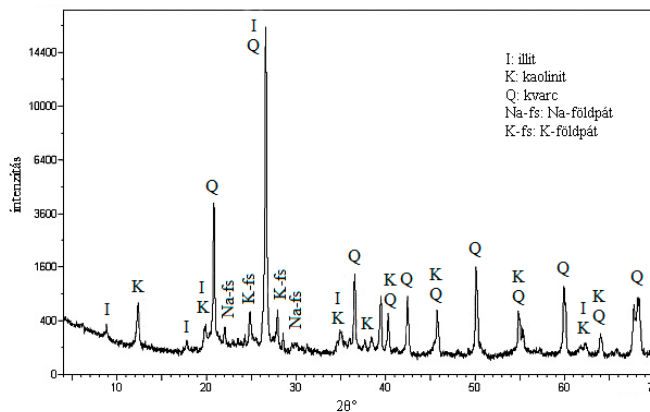
Eredmények

A 45 TIM pontból származó talajok ^{137}Cs koncentrációja

A gamma-spektroszkópiai mérések alapján a talajszelvények felső 30 cm-ben mutatható ki a ^{137}Cs . Mélyebbről származó talajmintákban (30-150 cm) nem tapasztaltunk a detektálási határ feletti koncentrációt. A felső réteg ^{137}Cs koncentrációi a detektálási határtól ($0,5 \text{ Bq kg}^{-1}$) $61,1\pm 2,2 \text{ Bq kg}^{-1}$ -ig terjedtek. A két legnagyobb érték ($46,9 \text{ Bq kg}^{-1}$ és $61,1 \text{ Bq kg}^{-1}$) közül az egyik a Gödöllői-dombság területén (E0313), a másik a Budai-hegység nyugati lábánál (E0713) található. A többi mért érték 21 Bq kg^{-1} -nél kisebb.

Az E0713A szelvény ásványos összetétele

A 2. ábrán látható röntgendiffraktogram analízise azt mutatja, hogy a mintában előforduló fő agyagásványok az illit $[(\text{Si}_{7-6,5}\text{Al}_{1-1,5}\text{O}_{20})(\text{OH})_4\text{Al}_4\text{K}_{11,5} \times n\text{H}_2\text{O}]$ és a kaolinit $[\text{Al}_2\text{O}_3 \times 2\text{SiO}_2 \times 2\text{H}_2\text{O}]$. Emellett kvarc, K- és Na-földpát is megtalálható a mintában. A termikus elemzés alapján az egyes aggregátum tartományokban az agyagásvány mennyisége $12,5$ és $35 \text{ m/m}\%$ között változik.

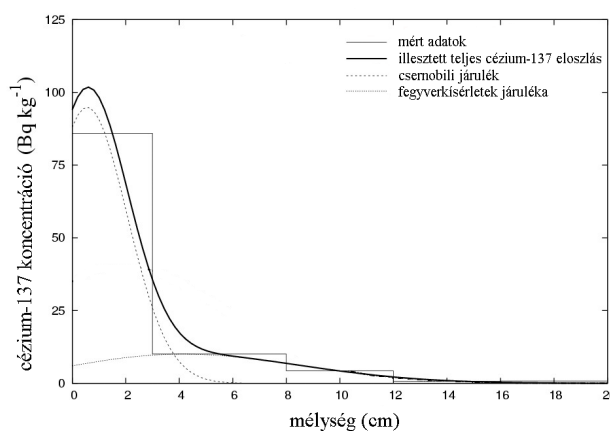


2. ábra: Az XRD spektrum az E0713A szelvény mintájában lévő ásványok karakterisztikus reflexióit mutatja.

A ^{137}Cs koncentráció mélységprofilja az E0713B mintavételi helyen

A 15 mélységtartományból származó minta (0-3, 3-8, 8-12, 12-16, 16-20 cm stb.) közül a legnagyobb ^{137}Cs koncentrációval ($85,9\pm 1,1 \text{ Bq kg}^{-1}$) a legfelső talajréteg (0-3 cm) rendelkezik. A mélységgel gyorsan csökken a ^{137}Cs koncentrációja, a 3-8, 8-12, 12-16 és 16-20 cm mélységközökben rendre $10\pm 0,4 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$, $1, 4,3\pm 0,3 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$, $1, 0,7\pm 0,3 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$ és $0,8\pm 0,3 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$ adódott. A 3. ábra mutatja a koncentráció mélységprofilját.

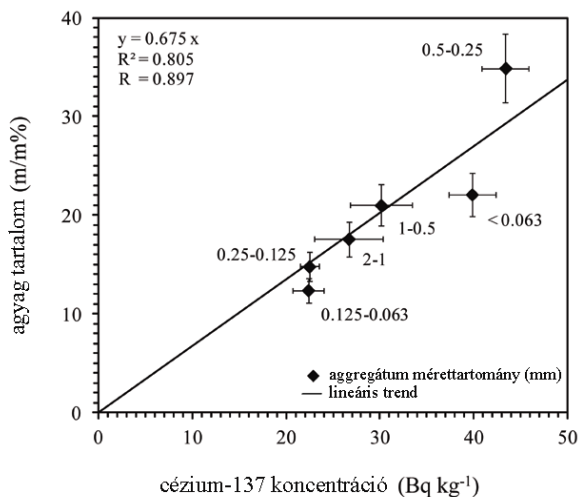
A 20 cm-nél mélyebb tartományokból származó minták ^{137}Cs koncentrációi a detektálási határ alatt maradtak ($0,5 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$).



3. ábra: Az E0713B mintavételi pontban a ^{137}Cs mélységprofilja, és a hozzá illesztett eloszlás a konvekciós-diffúziós modell alapján.

Az E0713A szelvény felső 0-10 cm-ének aggregátum mérettartományában mért ^{137}Cs koncentrációk

A legnagyobb koncentrációkat ($43,4\pm 2,5 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$ és $39,8\pm 2,5 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$) a $0,25-0,125 \text{ mm}$ és a $<0,063 \text{ mm}$ tartományban mértük (4. ábra). Az aggregátum mérettartományokban a detektálható ^{137}Cs koncentrációkat a 4. ábra mutatja.



4. ábra: Az E0713A szelvény mintájának egyes aggregátum mérettartományaiiban mért ^{137}Cs koncentrációk és agyagtartalmak.

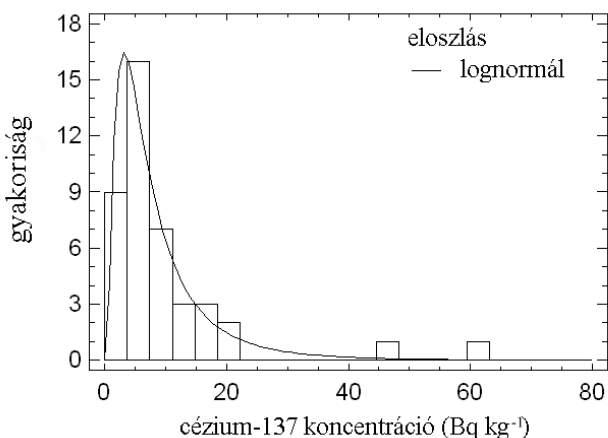
Diszkusszió

A ^{137}Cs koncentráció-adatok statisztikai analízise

A felső 30 cm-ből származó TIM átlagminták ^{137}Cs koncentrációiból képzett adathalmazon a Statgraphics Centurion XV. szoftvercsomag felhasználásával statisztikai analízist végeztünk, hogy a megye területén található TIM pontok együttesét, és ebből általánosítva a megye talajait jellemezzük.

Az adathalmaz 9,5 $\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$ átlaggal, 11,3 $\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$ szórással, 6,4 $\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$ mértani középvel és 2,3 mértani szórással (geometric standard deviation) írható le.

A ^{137}Cs koncentrációk eloszlásvizsgálatára χ^2 -próbát alkalmaztunk. Négy lehetséges eloszlást vizsgáltunk meg: lognormál-, Weibull-, exponenciális és gamma-eloszlásokat. Ezekre a χ^2 -próbával kapott, az illeszkedés pontosságát kifejező P-értékre rendre 0,05, 0,02, 0,0005 és 0,0007 kaptunk. Ebből azt a következtetést vontuk le, hogy a vizsgált eloszlások közül az adatpontok legjobban lognormál eloszlással írhatóak le 5%-os szignifikancia szint mellett (5. ábra).



5. ábra: A 45 talajszelvény felső (0-30 cm) rétegében mért cézium-137 koncentráció értékek gyakoriság-eloszlása. A ^{137}Cs koncentrációk a mintavételezés éveire, azaz 1992-re korrigáltak.

Az eredmények során kettő, a többihez képest relatívan nagy koncentrációjú értéket tapasztaltunk (47 és 61 $\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$). Megvizsgáltuk, hogy ezek tekinthetők-e a lognormál-eloszláshoz tartozónak, vagy kiugró értékek. Ezért először az adatok logaritmusát vettük, és erre a transzformált halmazra végrehajtottuk a Grubbs-tesztet, ami a normál-eloszlású valószínűségi változók esetén alkalmas a kiugró értékek elkülönítésére. A teszt $p=0,2$ eredményt hozott, ami 5%-os megbízhatósági szint mellett azt jelenti, hogy elfogadhatjuk azt a hipotézist, hogy a két említett érték nem kiugró érték.

Ezen két statisztikus eredmény birtokában azt mondhatjuk, hogy méréseink alapján a fenti átlagértékekkel jellemzett lognormál-eloszlás írja le Pest megyében a talajok felső 30 cm-ének ^{137}Cs koncentrációját.

A ^{137}Cs területi eloszlása Pest megyében

A 45 TIM ponthoz tartozó ^{137}Cs koncentráció értékeit ArcGIS szoftvercsomag felhasználásával jelenítettük meg (1. ábra). Ez a ^{137}Cs -térkép nyolcszor nagyobb mintasűrűséggel készült, mint ami az Európai ^{137}Cs Atlaszban [3], ugyanerre a területre bemutatott térképhez tartozik, ezért lehetővé vált a kisebb területi változások megfigyelése.

A Pilis, a Budai-hegység és a Gödöllői-dombság északi részén az átlaghoz (9,5 $\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$) képest nagyobb (10,0-61,1 $\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$), míg a Gödöllői-dombság, a Pesti-síkság és a Börzsöny területén kisebb (0,0-10,0 $\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$) a ^{137}Cs koncentrációja. Ezek a területi változások kapcsolatban lehetnek a csapadék eloszlásával, mivel a ^{137}Cs nagy része nedves ülepedéssel került a földfelszínre. A ^{137}Cs két forrása közül a csernobili kibocsátás esetét vizsgáltuk meg jobban. A mért ^{137}Cs értékek területi eloszlását Pest megyében összevetettük az Országos Meteorológiai Szolgálat (OMSZ) folyamatosan működő mérőrendszerének eredményeivel, amiről a Csernobili események utáni időszakra külön értékelést és csapadéktérképeket tettek közzé [17]. Pest megyében az OMSZ két nagyobb csapadékeseményt regisztrált: április 29-én és május 8-án. Ezen a két napon a csapadéktérképek alapján átlagosan 31 mm csapadék hullott Budapest környékén és a Gödöllői-dombság északi részén. A Gödöllői-dombság déli részén, a Börzsöny és a Pesti síkság területén ugyanakkor kevesebb, mint 14 mm volt. Ez a különbség döntően a terület geomorfológiai jellegzetességeinek tulajdonítható, azaz a megye északi és nyugati oldalának magasabb térszínén jellemzően nagyobb csapadékhányadok vannak, mint a déli és keleti alacsonyabb térszínű részen. Mivel a ^{137}Cs értékek térbeli eloszlása a csapadékadatokkal kapcsolatban van, ezért a ^{137}Cs koncentrációk területi heterogenitása a csapadékeloszlással magyarázható.

Az agyagtartalom és ^{137}Cs koncentráció közötti kapcsolat a szemcseméret frakciókban

Az E0713A szelvény mintájának aggregátum mérettartományaiiban mért ^{137}Cs koncentráció és agyag tartalom értékeket az 4. ábra mutatja be. A 2 mm-nél nagyobb aggregátum mérettartományt nem jelenítettük meg, mert ez esetben a mérettartomány felső határa nem meghatározott. Megfigyelhető, hogy a nagyobb agyagtartalomnál a ^{137}Cs -koncentrációk is nagyobbak, a legnagyobb mért érték mindkét paraméter esetében a 0,5-0,25 mm és a 0,063 mm alatti aggregátum mérettartományban van. Az eredményeink kvalitatívan összhangban vannak azzal a feltételezéssel, hogy a cézium atomok az agyagásványokhoz kötődnek. A mennyiségi elemzéshez az egyszerű lineáris korrelációs

együtthatót számoltuk ki. A vizsgált mérettartományokhoz tartozó ^{137}Cs koncentráció és agyagtartalom értékek között a korrelációs együttható 0,89-nek adódott. (Az ehhez tartozó P -érték 0,0012.) Az XRD elemzés alapján a minta illit és kaolinit agyagásványokat tartalmaz, amelyeket a cézium elsődleges megkötőinek tekintenek. Ez a korrelációs együttható megerősíti a cézium agyagásványokhoz való erős affinitását, amelyeket korábbi tanulmányok is igazoltak [8, 9, 10].

A cézium migrációjának modellezése és a mérési eredmények értelmezése a vertikális profilban

A 3. ábrán látható mélységprofil leírására a ^{137}Cs migrációjának a szorpciót is magában foglaló konvekciós-diffúziós modelljét alkalmaztuk P. Bossew nyomán [11]. Ennek alapja, hogy a ^{137}Cs két fázisban van jelen a talajban:

$$c = c_s + w \cdot c_L \quad (1)$$

Itt c a teljes térfogati ^{137}Cs koncentráció (Bq cm^{-3}), c_L a folyadék fázis, ill. c_s a száraz talaj ^{137}Cs koncentrációja, $w = V_{\text{víz}}/V_{\text{talaj}}$ a talaj víztartalma. A diffúziós egyenlet eredeti alakja a (molekuláris diffúziót és a hidrodinamikai diszperziót is magában foglaló) diffúziós állandó D' és talajvíz konvekciós sebesség v' paramétereivel, valamint a radioaktív bomlási tagot is figyelembe véve:

$$\begin{aligned} \dot{c}(\vec{x}, t) &= -\text{grad}(J(\vec{x}, t)) - \lambda \cdot c(\vec{x}, t) \\ J(x, t) &= -D' \text{grad}(c_L(\vec{x}, t)) + v' \cdot c_L(\vec{x}, t) \end{aligned} \quad (2) \text{ és } (3)$$

A pórusvízben oldott ^{137}Cs megkötődését (szorpcióját) a talaj szemcséihez (főként illit agyagásványokhoz) egyensúlyi állapotokon keresztül végbemenő folyamatnak tekintjük:

$$c_s(\vec{x}, t) = k_d c_L(\vec{x}, t) \quad (4)$$

Ahol k_d a szorpció egyensúlyi állandója. Ebből $c = k_d c_L + w \cdot c_L = (k_d + w)c_L = R_d c_L$ összefüggés adódik, ahol R_d a retardációs állandó, $R_d = k_d + w$. Ezekből, homogén közeget feltételezve (a talaj felszínével párhuzamos eltolásra szimmetrikus a rendszer, ettől kezdve csak a mélység a változó), és a v' vízszivárgási sebességet stacionáriusan a hosszú időkre vett átlagával helyettesítve, és bevezetve az effektív diffúziós együtthatót $D = D'/R_d$, és az effektív konvekciós sebességet $v = v'/R_d$, adódik a hagyományos alakú diffúziós-konvekciós egyenlet:

$$\dot{c} - D\Delta c + v \text{grad}c = -\lambda \cdot c \quad (5)$$

A peremfeltétel a $J(x=0, t) = J_0 \delta(t)$ impulzus-szerű kezdeti ^{137}Cs -fluxus. Ennek megoldását P. Bossew és G. Kirchner dolgozta ki [11], és eredményül az alábbi hely- és időfüggő megoldást kapták:

$$c(x, t, J_0, D, v) = \frac{1}{\rho} J_0 e^{-\lambda t} \left\{ \frac{1}{\sqrt{\pi D t}} e^{-(x-vt)^2/(4Dt)} - \frac{v}{2D} e^{vx/D} \text{erfc} \left(\frac{v}{2} \sqrt{\frac{t}{D}} + \frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) \right\} \quad (6)$$

Itt c a ^{137}Cs koncentrációja $\text{Bq} \times \text{g}^{-1}$ egységekben, egy adott forrásból, t évvel a kezdeti feltétel időpontja után, J_0 a kezdeti impulzusszerű kihullás-sűrűség ($\text{Bq} \times \text{cm}^{-2}$), D az effektív diffúziós együttható ($\text{cm}^2 \times \text{y}^{-1}$) és v az effektív migrációs sebesség abszolút értéke ($\text{cm} \times \text{y}^{-1}$). Az effektív migrációs paramétereket a talaj-oldatban érvényes fizikai diffúziós állandóból (D') és a víz szivárgási sebességéből (v') lehet származtatni a következők szerint: $D = D'/R_d$, $v = v'/R_d$ (ahol R_d a retardációs állandó. ld. [11]). Az $1/\rho$ faktor a Bq cm^{-3} értékeket Bq g^{-1} mértékegységűvé alakítja át a talaj ρ -val jelölt átlagsűrűsége (térfogattömeg) alapján. Itt az $x=0$ szint a talaj felszínét jelenti, és a mélységgel nő az x értéke.

Az atmoszférából kihulló ^{137}Cs -nek két forrását tételezzük fel. Az első a csernobili atomerőmű balesetből származó tag (J_{01}) és a másik a nukleáris fegyverkísérletekből származó tag (J_{02}). Ennek időszaka 1945-1963 között volt, de az időpontját 1963-nak vesszük, mert ekkor érte el ez a kihullás a maximumát (23 évvel a csernobili atomerőmű baleset előtt, ezért van a $t+23$ tag a (7) egyenletben). A teljes cézium eloszlás (c_m) a két forrás összege, és mindig az 1 index jelöli a csernobili forrást, 2 a nukleáris tesztek forrástagját.

$$c_m(x, t) = c(x, t, J_{01}, D_1, v_1) + c(x, t + 23, J_{02}, D_2, v_2) \quad (7)$$

A két forrásnak különböző amplitúdói vannak (J_{01} , J_{02}). A J_{02} -t (fegyverkísérletek) a már létező adatokból becsültük meg, Almgren és Isaksson gondolatmenetét alkalmazva [18]. Az Európai ^{137}Cs Atlasz [3] 20. oldalán a légköri fegyverkísérletekből származó ^{137}Cs kihullásból a bomlási törvény alkalmazásával megmaradó szintek térképe található meg. (Residual Levels of ^{137}Cs Deposition from Atmospheric Weapon Test, Effective on 1 May, 1986). A térkép szerint Pest megye területén lényegében homogén módon $2.9 \text{ kBq} \times \text{m}^{-2}$ kihullási szint alkalmazható a csernobili atomerőmű baleset időpontjában. Ezt visszszámoltuk a pillanatszerűnek tekintett 1963-as időpontra, ami $4.8 \text{ kBq} \times \text{m}^{-2}$ -es értéket adott eredményül. A J_{01} amplitúdót a teljes kihullás (1986-ra vonatkoztatott) mért értékéből határoztuk meg, ami a mélységprofil téglányösszege:

$$J_{\text{total}} = e^{\lambda t} \rho \sum_{i=1}^n c_m(x_i) \Delta x_i = J_{01} + J_{02} e^{-\lambda \Delta t} \quad (8)$$

Itt $n = 5$ (a talajszintek száma, ahol a detektálási küszöbnél magasabb koncentrációt mértünk), $\rho = 1.6 \text{ g} \times \text{cm}^{-3}$ a talaj átlagsűrűsége, $c_m(x_i)$ a mért koncentrációk x_i mélységben, Δx_i a mintázott talajszint vastagsága. Az adatok alapján $J_{\text{total}} = 9.2 \text{ kBq} \times \text{m}^{-2}$ adódott az 1986-ban érvényes teljes kihullásra, ennek a csernobili atomerőmű balesetből származó járuléka $J_{01} = 6.3 \text{ kBq} \times \text{m}^{-2}$. Ezek az adatok összhangban vannak az Európai ^{137}Cs Atlasz Magyarországra vonatkozó térképén feltüntetett értékkel [3].

A 3. ábrán bemutatott mélységprofil és az (6) egyenlet alapján legkisebb négyzetek módszerével történő illesztéssel megkerestük az adatokra legjobban illeszkedő migrációs

paramétereket: D_1, v_1, D_2, v_2 . Az illesztési paraméterek számát csökkentettük azzal a feltevessel, hogy a D' és v' paraméterek azonosak a két forrásra, de a retardációs állandók különböznek, és ezek aránya k . Ezzel $D_2 = D_1 k$, és $v_2 = v_1 k$ alapján csak három illesztési paramétert használtunk. A J_{01}, J_{02} amplitúdók max. 10%-os változásának bevezetésével lehetett a legjobb illesztést elérni. Az illesztést elvégezve $J_{01} = 0,64 \text{ Bq}\times\text{cm}^{-2}$, $J_{02} = 0,43 \text{ Bq}\times\text{cm}^{-2}$, $D_1 = 0,053 \text{ cm}^2\times\text{y}^{-1}$, $v_1 = 0,014 \text{ cm}\times\text{y}^{-1}$, $k = 4,6$ értékek adódtak. Kirchner és

munkatársai áttekintették a konvekciós-diffúziós modell alkalmazásával nyert migrációs paramétereket, amit az irodalomban a ^{137}Cs mozgására publikáltak [12]. Ebben az agyagos talajokra a következő effektív migrációs paramétereket határozták meg: $D = 0,02\text{-}2,9 \text{ cm}^2 \text{ y}^{-1}$ és $v = 0,0 - 0,6 \text{ cm y}^{-1}$. A kapott D_1 és v_1 értékek ezen intervallumok alsó határaihoz közel esnek. Ez is alátámasztja, hogy az E0714 ponton a ^{137}Cs diffúziója általánosabb értelemben is nagyon lassú.

Következtetések

Pest megye talajainak felső 30 cm-ből származó minták ^{137}Cs koncentrációja alapján elkészítettük a régió jelenleg legrészletesebb ^{137}Cs térképét, amely nyolcszor nagyobb mintasűrűségű, mint a terület korábbi térképe, így lehetővé vált a cézium-137 területi heterogenitásának feltárása, amely a korábbi térképeken a kisebb mintasűrűség miatt egységes eloszlásként mutatkozott. Következésképpen nagyobb ^{137}Cs koncentráció ($10,0\text{-}61,1 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$) a Pilisben, a Budai-hegységben és a Gödöllői-dombság északi részén jelenik meg, míg a Gödöllői-dombság déli részén, a Pesti-síkság és a Börzsöny területén a talajok felső rétege kicsi ^{137}Cs koncentrációval jellemezhető ($0,0\text{-}10,0 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$). Az 1992-es talajminták mért ^{137}Cs koncentráció adataiból végzett statisztikai elemzés alapján az adathalmaz lognormális

eloszlásának számtani átlaga $9,5\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$, szórása $11,3\text{Bq}\times\text{kg}^{-1}$, mértani átlaga $6,4 \text{ Bq}\times\text{kg}^{-1}$ és szórása 2,3, amelyekkel leírható Pest megye talajainak felső 30 cm-ben az átlagos ^{137}Cs koncentráció. A megye legnagyobb ^{137}Cs koncentrációjú részén mélyített talajszelvény mélységprofilja rámutatott, hogy a ^{137}Cs vertikális mozgását leíró paraméterek (effektív diffúziós együttható, migrációs sebesség) értéke kisebb, mint amit korábban, ugyanezen területnek egy közeli, szintén barna erdőtalajon fekvő pontján megállapítottak. Az E0713B szelvény részletes elemzése megerősíti, hogy a ^{137}Cs igen lassan mozog a talajban. Ezt a lassú mozgást a cézium-137 illit és kaolinit agyagásványokon történő szorpciója okozhatja a talajban.

Köszönetnyilvánítás

A szerzők köszönetüket fejezik ki Csorba Ottónak (ELTE, Budapest), Bódog-Enisz Margitnak (Pannon Egyetem, Veszprém), Benatos Patroklosnak (University of Illinois, Chicago), Bokori Editnek (Radanal Analitikai Izotóptechnikai Kft.) és az ELTE Litoszféra Fluidum Kutató Laboratóriumának.

Irodalomjegyzék

- [1] Szabó K. Zs., Udvardi B., Horváth Á., Bakacsi Zs., Pásztor L., Szabó J., Laczkó L., Szabó Cs.: Cesium-137 concentration of soils in Pest County, Hungary. *Journal of Environmental Radioactivity* 110, 38-45, 2012.
- [2] UNSCEAR – United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Sources and effects of ionizing radiation. Report to the General Assembly with scientific annexes, 2000.
- [3] De Cort M., Dubois G., Fridman S.D., Germenchuk M.G., Izrael Y.A., Janssens A., et al.: Atlas of caesium deposition on Europe after the Chernobyl accident. EUR Report 16733, EC, Office for Official Publications of the European Commission Communities, Luxembourg, 1998.
- [4] IAEA: Environmental consequences of the Chernobyl accident and their remediation: twenty years of experience. Report of the Chernobyl Forum Expert Group 'Environment'. Radiological Assessment Reports Series. International Atomic Energy Agency. Vienna, 2006.
- [5] Ivanov Y.A., Lewyckyj N., Levcuk S.E., Prister B.S., Firsakova S.K., Arkhipov N.P., Kruglov S.V., Alexakhin R.M., Sandalls J., Askbrant S.: Migration of ^{137}Cs and ^{90}Sr from Chernobyl fallout in Ukrainian, Belarussian and Russian soils. *J. Env. Rad.* 35, 1–21, 1997.
- [6] Szerbin P., Koblinger-Bokori E., Koblinger L., Végvári I., Ugron Á.: Caesium-137 migration in Hungarian soils. *Sci. Tot. Env.* 227, 215–227, 1999.
- [7] C. Papastefanou, M. Manolopoulou, S. Stoulos, E. Gerasopoulos: Soil-to- plant transfer of ^{137}Cs , ^{40}K and ^{7}Be . *J. Env. Rad.* 45 (1999) 59–65.
- [8] Cornell R.M.: Adsorption of cesium on minerals: a review. *J. Radanal. Nucl. Chem.* 171, 483–500, 1993.
- [9] Tamura T., Jacobs D.G.: Structural implications in cesium sorption, *Health Phys.* 2, 391–398, 1960.
- [10] Valcke E., Cremers A.: Sorption-desorption dynamics of radiocaesium in organic matter soils. *Sci. Tot. Env.* 157, 275–283, 1994.
- [11] Bossew P., Kirchner G.: Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection–dispersion equation revisited. *J. Env. Rad.* 73, 127–150, 2004
- [12] Kirchner G., Strebl F., Bossew P., Gerzabek M.H.: Vertical migration of radionuclides in undisturbed grassland soils. *J. Env. Rad.* 100, 716–20, 2009.
- [13] Koblinger-Bokori E., Koblinger L., Szerbin P., Ugron Á.: Measurements and modelling of ^{137}Cs migration into various types of soil. Proceedings Congress of IRPA, Hiroshima, 2000.
- [14] Knoll G.F.: Radiation detection and measurement. John Wiley & Sons Inc, 1989.
- [15] Jenkins R., Snyder R.: Introduction to X-Ray Powder Diffractometry. John Wiley & Sons Inc, 1996.
- [16] Brown M.E.: Introduction to thermal analysis: techniques and applications, Kluwer Academic Publishers, 2001
- [17] OMSZ – Hungarian Meteorological Service: Preliminary results of the atmospheric radioactivity as well as meteorological measurements carried out in Hungary in connection with Chernobyl nuclear power plant accident. OMSZ publications, No. 60. Budapest, 1986.
- [18] Isaksson M.: Vertical migration studies of ^{137}Cs from nuclear weapons fallout and the Chernobyl accident. *J. Env. Rad.* 91, 90–102, 2006.