



**Hévizek és ásványvizek
radon- és rádiumtartalma**

Doktori (PhD) értekezés

Baradács Eszter Mónika

Debreceni Egyetem
Debrecen, 2002

TARTALOMJEGYZÉK

I	BEVEZETÉS	1
II	IRODALMI ÁTTEKINTÉS	3
II.1	Radioaktivitás a környezetben	3
II.1.1	A sugárzásokról röviden	3
II.1.2	A rádium, a radon és bomlástermékeik	5
II.1.3	Felszínalatti vizek radioaktivitása. Az urán, a rádium és a radon geokémiája	7
II.1.4	Vizek radon- és rádiumtartalmára vonatkozó szabályozások	10
II.1.5	A lekötött dózis fogalma és a vizek fogyasztásából eredő sugárterhelés	11
II.1.6	Vizek ²²² Rn- és ²²⁶ Ra-tartalmának meghatározására vonatkozó nemzetközi és hazai mérések	13
II.2	Történeti rész	14
II.2.1	A radon története	14
II.2.2	A rádium története	15
II.2.3	Az ásvány- és hévíz hasznosítás rövid története	16
II.2.3.1	Előírások, szabványok	18
II.2.3.2	A felszínalatti vizek elhelyezkedés szerinti csoportosítása	19
II.3	Magyarország hévízkészlete	20
II.3.1	Felszínalatti hévíztárolók	21
a)	Triász időszei mélységivíz-tároló rendszerek	21
b)	Felső pannóniai mélységivíz-tároló rendszerek	22
II.3.2	A mélységi vizek összetétele, jellege és keletkezésüket meghatározó tényezők, folyamatok	22
II.3.3	Budapest hévizei	24
II.3.3.1	Budapest földtörténeti múltja	24
II.3.3.2	A főváros termál- és gyógyvizei	26
II.3.4	Budapesti hévizek radioaktivitása	29
II.4	Hargita-megyei ásványvizek	29
II.4.1	A Hargita-megyei ásványvíz hasznosítás rövid története	30
II.4.2	Hargita megye ásványvíz kincsei	31
II.4.3	A megye ásványvízfeltörési vonalai	32
II.4.4	Hargita-megyei ásványvizek radioaktivitása	33
III	ALKALMAZOTT MÉRÉSI MÓDSZEREK ÉS MÓDSZERFEJLESZTÉS	35
III.1	Hévizek alfa-radioaktivitásának vizsgálata maratottnyom-detektorral	35
III.1.1	Maratottnyom-detektorok	35
III.1.1.1	A nyomkialakulás elméleti modelljei	36

III.1.1.2	Nyomfeltárás és a nyomüreg kialakulása	37
III.1.1.3	Radamon, légtéri radonmonitor	39
III.1.2	Vízminták oldott radon- és rádiumtartalmának meghatározása nyomdetektoros módszerrel és metodikai mérések	41
III.1.2.1	Kísérleti elrendezés	41
III.1.2.2	Elméleti megfontolások	42
III.1.2.3	Kalibráció és a módszer érzékenységének hőmérsékletfüggése	46
III.1.2.4	Az érzékenység vízminta térfogatától való függése	47
III.1.2.5	A vízminta keveredésének vizsgálata	49
III.1.2.6	A módszer pontossága	52
III.2	Vízminták rádiumtartalmának meghatározása gamma-spektrometriai módszerrel	56
III.2.1.1	A minták elkészítése	56
III.3	Vízminták radontartalmának meghatározása Lucas-kamrán történő gázáramoltatással	58
III.4	Vízminták rádiumtartalmának meghatározása kémiai elválasztás után Lucas-kamrás módszerrel	59
IV	MÉRÉSI EREDMÉNYEK	60
IV.1	Az alkalmazott mérési módszerek összehasonlítása	60
IV.2	Budapesti termálvizek ²²⁶ Ra- és ²²² Rn-tartalma	63
IV.2.1	Sugáregészségügyi értékelés	69
IV.3	Hazai palackozott ásványvizek rádiumtartalma	71
IV.3.1	Sugáregészségügyi értékelés	74
IV.4	A mórágyi-rögön gyűjtött ivóvizek radontartalma	75
IV.5	Hargita-megyei ásványvizek rádiumtartalma	77
IV.5.1	Sugáregészségügyi értékelés	80
IV.6	Szlovéniai ásványvizek radon- és rádiumtartalma	81
V	ÖSSZEFOGLALÁS	83
VI	SUMMARY OF THE THESIS	86
VII	IRODALOMJEGYZÉK	91

VIII AZ ÉRTEKEZÉS TÉMAKÖRÉBEN MEGJELENT KÖZLEMÉNYEK	98
IX KÖSZÖNETNYÍLVÁNÍTÁS	102
X FÜGGELÉK	103

I BEVEZETÉS

A hévizek és ásványvizek több nagyságrendnyi tartományban változó radioaktivitása döntően a geológiai környezetben felvett radontól és rádiumtól ered. Ezen alfa-radioaktivitást is hordozó elemek meghatározásával több szempontból is érdemes foglalkozni. Egyrészt a lakossági sugárterhelés egyik fontos összetevőjét képezik a kiemelkedő aktivitású vizek felhasználóinak körében, másrészt nyomjelzői lehetnek a mélységi vizek transzportfolyamatainak.

Sugáregészségügyi szempontból az ivó- és ásványvizek rádium-, illetve radontartalmának vizsgálata és a fogyasztásukból eredő sugárterhelés járulékának becslése napjaink aktuális feladata. A jó minőségű ivóvíz világviszonylatban vett szűkülő készletei miatt a lakosság érdeklődése fokozottan a palackozott ásványvizek felé fordul. Hazánkban is megfigyelhető az utóbbi években az egy főre eső ásványvíz-fogyasztás évről évre történő jelentős növekedése. Mind az ivóvizek, mind a természetes ásványvizek különböző vízáadó rétegekből és mélységből erednek, ezért ásványianyag- és természetes radionuklid-tartalmuk tág határok között változik, köztük kiemelkedően nagy értékek is előfordulhatnak. A nagy ^{226}Ra -tartalmú ásványvizek, radonos ivóvizek napi fogyasztása hozzájárul a lakosság természetes radionuklidoktól származó belső sugárterhelésének növekedéséhez. Ezért a fogyasztásra kerülő ivóvizekben megengedhető radon és rádium aktivitáskoncentrációt sok országban előírásokkal szabályozzák. Magyarországon azonban nemhogy korlátozásokat nem vezettek be eddig, de az ilyen irányú mérések is szörványosak; ásványvizekre vonatkozó vizsgálatok pedig csak az elmúlt néhány évben történtek.

A ^{222}Rn és ^{226}Ra radioaktivitásuk miatt még kis mennyiségben is könnyen mérhető radioizotópok, s így mint *természetes nyomjelzők* vesznek részt a felszíni és felszínalatti vizek transzportfolyamataiban. A természetes vizek ^{226}Ra -tartalmának mérése információkat adhat a víz eredetéről, keveredéséről, föld alatt megtett útvjáról. Továbbá, pl. rekultivált meddőhányók, zagyterek kifolyó vizeinek ^{226}Ra -tartalma közvetlenül jelezheti a fedőréteg állapotát. A fentiek alapján kézenfekvő, hogy a rádium és radon aktivitáskoncentráció vízmintákban történő egyszerű, megbízható és tömegesen végezhető mérésének nagy jelentősége van, s egyben az ilyen eljárások és azok alkalmazása iránti igény növekedése várható már a közeljövőben.

Vízminták radon- és rádiumtartalmának meghatározása lehetséges maratottonyom-detektoros módszerrel is. Bekapcsolódva az MTA Atommagkutató Intézet Radon Csoportjában folyó kutatásokba egy ilyen maratottonyom-detektoros radonmonitoros módszer kifejlesztése az én PhD munkám idején és az én meghatározó hozzájárulásommal történt az elmúlt években. Vizsgálataim során az első alkalmazások után még sok nyitott kérdést felvető módszert továbbfejlesztettem, megvizsgáltam és meghatároztam alkalmazhatóságának

feltételeit és nagymértékben hozzájárultam a módszer kvantitatívvá tételéhez. Ezzel lehetővé vált ezen olcsó és nagy számú mérést megengedő maratottnyom-detektoros technika alkalmazása vízminták oldott ^{222}Rn - és ^{226}Ra -tartalmának laboratóriumi körülmények közötti meghatározására.

Munkám során, a "Mélysegi vizek rádiumtartalmának vizsgálata" (T 022985) és "A ^{222}Rn és ^{220}Rn izotópok a természetes és épített környezetben" (T 09306) című OTKA kutatási programok keretében, különböző jellegű vizekből pl. kereskedelmi forgalomban kapható palackozott ásványvizekből; fürdő- és ivókúrát ellátó forrásokból és kutakból; a lakosság által széles körben használt közüzemi vizekből és szabadon folyó forrásvizekből, artézi kutakból, borvizekből szűrőpróbaszerűen és tematikusan beszerzett vízminták ^{222}Rn - és ^{226}Ra -tartalmának meghatározását végeztem el. A kiválasztott minták vizsgálatának célja az volt, hogy i.) tájékoztatást adjon a vizsgált körben előforduló rádium- és radonkoncentrációkról, és a vizsgálatban kiszűrt magas rádium- vagy radontartalmú vizek előfordulási helyeiről; ii.) mérési eredményeink és ismert vagy feltételezett fogyasztási szokások alapján a lakosság egy-egy kiválasztható csoportjára becsléseket végezzünk a vizek fogyasztása miatti járulékos sugárterhelésre vonatkozóan.

Dolgozatom az alábbi szerkezetet követi: a *Bevezetés* utáni *Irodalmi áttekintés* című fejezetben összefoglalom a környezeti radioaktivitásra, Magyarország és Hargita-megye felszínalatti vízkészleteire vonatkozó irodalmi ismereteket.

A III. fejezetben ismertetem a munkám során alkalmazott maratottnyom-detektoros radonmonitoros és gamma-spektrometriás módszereket. Bemutatom a minták elkészítésének menetét, valamint itt ismertetem az általam végzett módszerfejlesztéseket is. A fejezet végén még röviden ismertetek egy-egy radon és rádium meghatározási eljárást, amelyek az ún. radonemanáción alapuló módszerek körébe tartoznak. Az általam mért budapesti termálvíz adatokat, egy együttműködés keretében, ezekkel az OSSKI-ban használatos módszerekkel kapott független mérési eredményekkel is összehasonlítottam.

Befejezésül a IV. fejezetben bemutatom a fenti módszerek alkalmazásával, hazai termál-, ivó- és palackozott ásványvizek, valamint Hargita-megyei borvizek és szlovéniai ásványvizek radon- és rádiumtartalmának vizsgálata során kapott mérési eredményeket, azok lehetséges összevetését, értelmezését és a felhasználásukkal végzett dózisbecslés eredményét.

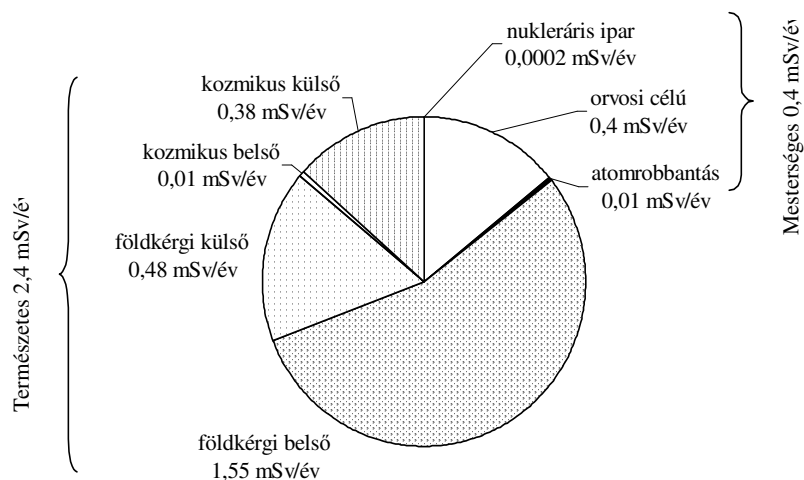
A dolgozatot magyar és angol nyelvű összefoglalás zárja.

II IRODALMI ÁTTEKINTÉS

II.1 RADIOAKTIVITÁS A KÖRNYEZETBEN

II.1.1 A sugárzásokról röviden

Életünket rendkívül sokféle, különböző forrásból származó sugárzás kereszttüzében éljük. A sugárzások okozta fizikai, kémiai és biológiai hatások összességét sugárterhelésnek nevezzük. A könnyebb áttekinthetőség kedvéért célszerű az élőlényeket érő sugárzásokat és az általuk okozott sugárterhelést meghatározott szempontok szerint csoportokba sorolni. Eredet szerint természetes és mesterséges, míg a sugárhatást elviselő élőlény szempontjából külső és belső sugárforrásokat különböztetünk meg. Az ENSZ Atomsugárzásokat Vizsgáló Tudományos Bizottságának (UNSCEAR) 2000. évi felmérése szerint a Föld népességének átlagos sugárterhelése 2,8 mSv/év (II-1. ábra). Ennek döntő többsége a természetes eredetű háttérsugárzásból származik (2,4 mSv/év), amelynek 2/3-a belső, 1/3-a pedig külső forrásokból ér bennünket. A mesterséges forrásokból származó összes sugárterhelésünk (0,4 mSv/év) kevesebb, mint a természetes eredetű évenkénti sugárdózisunk 20 %-a [UN-00].



II-1. ábra. A népesség átlagos sugárterhelése a főbb természetes és mesterséges források szerinti bontásban

A természetes háttérsugárzás két forrása a földkéreg és a világűr. A földkérgi (terresztrikus) komponens hosszú felezési idejű, ősi ún. primordiális radioizotópok (^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th), illetve az urán és tórium bomlási sor elemei alkotják, melyek közül dozimetriai szempontból a ^{222}Rn és bomlástermékei szerepelnek legnagyobb súllyal. Ezek a földkérgi komponens több mint felét teszik ki.

A Föld légkörének magasabb rétegeit bombázza kozmikus sugárzás, részint a Föld mágneses árnyékolása, részint a levegő atomjaival történő kölcsönhatása miatt nem éri el a Föld felszínét. Ezen kölcsönhatás során a légkör felső rétegeiben keletkező elemeket kozmogén radioizotópoknak nevezzük (^{14}C , ^3H). A légkör földfelszín közeli radioaktivitásának zömét azonban nem a kozmogén radioizotópok, hanem a talajból származó toron és radon, valamint ezek bomlástermékei alkotják.

II-1. táblázat. A természetes forrásokból származó átlagos évi sugárterhelés
[UN-00]

A sugárzás forrása	Évi effektív dózis (mSv)
Kozmikus	
Ionizáló összetevő	0,28
Neutron összetevő	0,10
Kozmogén radionuklidok	0,01
Földkérgi, külső besugárzás	
Szabadtéri	0,07
Beltéri	0,41
Földkérgi, belső besugárzás	
Belégzés	
Urán és tórium bomlási sor elemei	0,006
Radon (^{222}Rn)	1,15
Toron (^{220}Rn)	0,10
Lenyelés	
^{40}K	0,17
Urán és tórium bomlási sor elemei	0,12
Összesen, kerekítve	2,4

Az emberi szervezet számára nélkülözhetetlen a légzés, a táplálkozás és a folyadék felvétel, mely folyamatok révén a sugárterhelés 2/3 részét kapjuk. Ezen dózis nagyobb része a lakások és munkahelyek levegőjében lévő, a ^{238}U bomlási sorában található ^{222}Rn -tól és bomlástermékeitől, kisebb része pedig a táplálék és az ivóvíz, a napjainkban egyre szélesebb körben fogyasztott ásványvizek

radioaktivitásától ered. Ezek az elemek a szervezetbe kerülve részt vesznek a sejtpépítésben, illetve a szervekbe beépülve hatással lehetnek azok működésére.

A természetes háttérsugárzás mértéke a népességben belül is jelentős eltéréseket mutat. A földrajzi hely, az időjárás, a lakóépületek, de még olyan szokások is, hogy hányszor szellőztetünk, nyitott ablaknál alszunk-e, hol szoktunk üdülni: tengerparton vagy hegyekben, befolyásolják éves sugárterhelésünket. Ezen tényezőket is figyelembe véve a népesség természetes sugárforrásokból eredő sugárterhelésének források szerinti felbontása látható az II-1. táblázatban.

II.1.2 A rádium, a radon és bomlástermékeik

A rádium a periódusos rendszer IIA csoportjában található alkáliföldfém. Huszonöt izotópja közül a természetben négy található meg (^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra , ^{228}Ra). Ezek közül leggyakoribb, és egyben legtoxikusabb a ^{238}U bomlási sorában keletkező ^{226}Ra , melynek felezési ideje 1600 év. Az 6,7 év felezési idejű ^{228}Ra (mezotórium) a ^{232}Th bomlási sorában keletkezik s a természetben a ^{226}Ra -mal kb. azonos aktivitáskoncentrációban van jelen. Míg a ^{226}Ra -ra vonatkozóan nagyon sok, addig a ^{228}Ra -ra nagyon kevés adat van a tápláléklánc egyes elemeiben és az élőlényekben kialakuló koncentrációkra vonatkozóan. A másik két izotóp közül a ^{224}Ra ($T_{1/2}= 3,64$ nap) szintén a ^{232}Th bomlási sorában, míg a ^{223}Ra ($T_{1/2}= 11,4$ nap) a ^{235}U bomlási sorában keletkezik. A két utóbbi izotóp felezési ideje jóval kisebb, mint a ^{226}Ra és a ^{228}Ra izotópoké, amely tény jelentősen befolyásolja geokémiai viselkedésüket és az élő szervezetekbe való beépülésük mértékét is. Az egyes bomlási sorok rádiummal és radonnal kapcsolatos legfontosabb jellemzőit a II-2. táblázat foglalja össze.

II-2. táblázat. A természetes bomlási sorok néhány jellemzője

Bomlási sor neve	Urán	Tórium		Aktinium
Hosszú életű anyaelem és felezési ideje	^{238}U 4,5×10 ⁹ év	^{232}Th 1,39×10 ¹⁰ év		^{235}U 7,13×10 ⁸ év
Rádium anyaelem, felezési ideje és a bomlási mód	^{226}Ra 1600 év α-bomló	^{228}Ra 6,7 év β-bomló	^{224}Ra 3,64 nap α-bomló	^{223}Ra 11,4 nap α-bomló
Radon izotóp és felezési ideje	^{222}Rn (radon) 3,82 nap	^{220}Rn (toron) 55,6 s		^{219}Rn (aktinon) 3,9 s
Stabil végmag	^{206}Pb	^{208}Pb		^{207}Pb

A rádium szerves savakkal erős komplex képző. Saját ásványa nincs, de a kőzetekre ható természetes vizek viszonylag hamar ki tudják oldani a rádiumot. Oldóképességét tekintve meghatározó szerepe van a víz kémiai összetételének és kémhatásának is. A rádium kémiai sajátságai tekintetében hasonló a kalciumhoz

és a báriumhoz, izomorf módon helyettesíti is őket vegyületeikben. Sói, a RaCl_2 és a RaBr_2 vízben jól oldódnak. A rádium jól szorbeálódik vas-hidroxidokon, tőzegen, agyagásványokon, szerves anyagokban gazdag fenéki iszapban.

A természetben előforduló három radioaktív bomlási sor mindegyikében megtalálható a radon nemesgáz egy-egy izotópja, melyek az egyes rádium izotópok bomlástermékei. A radonnak dozimetriai szempontból két fontos izotópja van: a ^{222}Rn (radon), amely az urán bomlási sorban a ^{226}Ra közvetlen bomlásakor keletkezik és a ^{220}Rn (toron), mely a tórium sor eleme és a ^{224}Ra közvetlen bomlásából származik. A radon nemesgáz, de mindkét izotópja szilárd halmazállapotú fémes elemek izotópjaivá bomlik (lásd II-3. táblázat). Ezek a bomlástermékek hozzákapcsolódnak a levegőben lebegő kondenzációs magokhoz és porszemekhez, melyekkel együtt belélegezzük őket, így azok a tüdőt és hörgőt borító hámsejteket közvetlenül besugározzák. A toron által okozott egészségügyi probléma sokkal kevésbé kiterjedt és általában könnyebben kezelhető. A rövid, 55,6 másodperces felezési idő miatt nem jut el a keletkezési helyétől nagyobb távolságokra, így a zárt terekben való feldúsulása is sokkal ritkábban fordul elő. Mivel a radontól származó sugárterhelés a természetes eredetű terhelés mintegy felét adja (II-1. táblázat), ezért vizsgálata a lakosság szempontjából is megkülönböztetett figyelmet érdemel.

Méréseimnél a radonizotópok közül a ^{222}Rn -nak azért is kiemelkedő jelentősége van, mivel a vizek ^{226}Ra -tartalmának mérését ezen radonizotóp felhasználásával végeztem. A ^{226}Ra és rövid felezési idejű bomlástermékeinek fő bomlási tulajdonságait a II-3. táblázat tartalmazza.

II-3. táblázat. A ^{226}Ra és rövid felezési idejű termékeinek fő bomlási tulajdonságai [ICRP-65]

		Fő sugárzási energiák és hozamok					
		alfa		béta		gamma	
Izotóp	Felezési idő	Energia (MeV)	y (%)	Energia (MeV)	y (%)	Energia (MeV)	y (%)
^{226}Ra	1600 év	4,78	94,3	-	-	0,186	4
		4,59	5,7	-	-	0,26	0,007
^{222}Rn	3,824 nap	5,49	100	-	-	-	-
^{218}Po	3,05 perc	6,00	100	-	-	-	-
^{214}Pb	26,8 perc	-	-	1,02	6	0,352	37
		-	-	0,7	42	0,295	19
		-	-	0,65	48	0,242	8
^{214}Bi	19,9 perc	-	-	3,27	19	0,609	46
		-	-	1,88	9	1,764	16
		-	-	1,51	40	1,120	15
^{214}Po	164 μs	7,69	100	-	-	-	-

II.1.3 Felszínalatti vizek radioaktivitása. Az urán, a rádium és a radon geokémiája

A felszíni vizek természetes radioaktivitása általában jóval kisebb a termál- és ásványvizek radioaktivitásánál. A felszínalatti vizek hosszú időt töltenek különböző kőzeteket és üledékeket tartalmazó vízzáró rétegek között, amelyekkel kölcsönhatásba lépnek, így a felszínre jutva jelentős mennyiségű oldott radioizotópot hozhatnak magukkal. A vizek "vegyi alkatát", jellegét és radioaktivitását elsősorban a víztároló kőzetek típusa és a hidrológiai ciklussal való kapcsolata határozza meg. A természetben előforduló ^{238}U , ^{232}Th és ^{235}U bomlási sor elemei adják a kőzetek, illetve a velük érintkező felszínalatti vizek radioaktivitásának nagy részét, jóllehet kis mennyiségben tartalmaznak kozmogén izotópokat is.

A kőzetek urántartalma, melyet jelentősen befolyásol a kőzetek típusa, igen eltérő lehet a Föld különböző területein. A Ca^{2+} -ion sugara közeli az U^{4+} -ion sugarához, így bizonyos kalciumásványok izomorf módon befogják az urániont. Az uránnak van vízben oldódó vegyülete, míg a tórium és vegyületei egyáltalán nem oldódnak vízben, ezért az utóbbiaknak korlátozott a vándorlása. Az uranilionok szerves (oxálsav, ecetsav, szalicilsav, stb.) és szervetlen savakkal (pl. szénsav) erős komplexképzők. Urándúsulást főleg savas vegyhatású magmás és másodlagos üledékes kőzetekben figyeltek meg (pl. gránit magma, agyag, mészkő, stb.). Az uránásványok valószínűleg későn kristályosodtak ki a vulkanikus kőzetek keletkezésekor, lerakódásuk elsősorban érces repedéseiben valamint ércfogó regionális törések mentén lehetséges. Ha ezeket redukív hatás éri, akkor a kőzetszemcsék felszínén rádiumsók csapódnak ki. A bomlási sorok elemei a kőzetekben, megfelelő körülmények között, radioaktív egyensúlyban vannak egymással. Legtöbbször azonban megbomlik ez az egyensúly, mivel eltérnek az urán és bomlástermékeinek migrációs folyamatai, továbbá, hogy a bomlások során keletkező radon "megszökhet" a kőzetből. A radioaktív egyensúly megbomlását főleg a ^{226}Ra és nem a ^{238}U migrálása okozza.

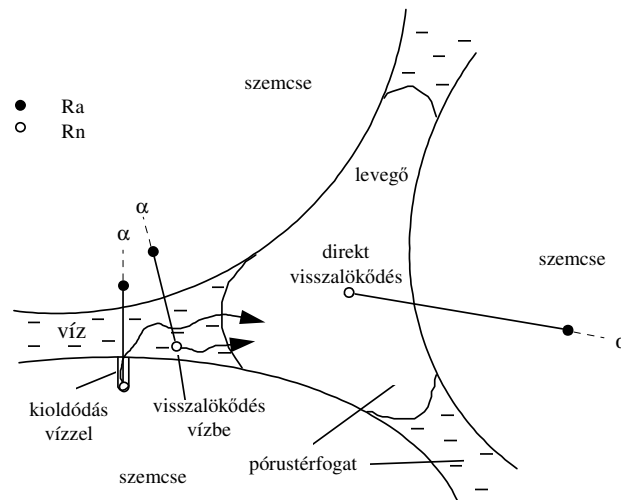
A rádium atomok és bomlástermékeik atomjai diffúzióval elmozdulhatnak a kőzet feloldása nélkül és különböző ioncserélő folyamatokban is részt vehetnek. Ezzel szemben az urán és a tórium legtöbbször az ásványok kristályrácsához kötve fordul elő, ezért elmozdulásuk csak az ásvány feloldódása után lehetséges. A fentiekkel magyarázható, hogy sok mélységi vízben a rádium és bomlástermékei jelen vannak, míg az urán és a tórium hiányzik. A rádium többnyire az uránérc lelőhelyeket kíséri, de más kőzetekben is előfordul. A kőzetek rádiumtartalma eltérő, a magmás kőzeteké a legnagyobb, a többi kőzeté ehhez képest kisebb. Néhány kőzet rádium, urán és tórium aktivitáskoncentrációja látható a II-4. táblázatban [Ei-87].

II-4. táblázat. Leggyakrabban előforduló kőzetek rádium, urán és tórium aktivitáskoncentrációja (Bq/kg)

Kőzet típusa	^{226}Ra	^{238}U	^{232}Th
--------------	-------------------	------------------	-------------------

Vulkanikus	48	48	48
Üledékes			
homokkő	26	15	24
palák	40	15	41
Mészkö	16	15	5

A radon levegővel jól elegyedik, apoláros oldószerekben, benzolszármazékokban, zsírokban jobban oldódik, míg vízben kevésbé. A radon (^{222}Rn) nemesgáz lévén nem alkot vegyületeket, így mozgékonyabb és olyan vizekben is feldúsulhat, melyek nem kerülnek közvetlen kapcsolatba nagyobb aktivitású kőzettel. Azonban toron és aktinon esetén ezt nem mondhatjuk el, mert rövid felezési idejük miatt jelentősebb távolságokra nem jutnak el. A radon és rádium közetszemcse határán való viselkedése figyelhető meg a II-2. ábrán.



II-2. ábra. A radon kiszabadulásának lehetőségei a rádium közetszemcse határán történő bomlásakor [Cs-94]

Ahhoz, hogy a szilárd anyagokban található rádium atomokból keletkező radon a felszínre kerülhessen, a keletkező radon atomoknak először ki kell jutni a kristály és a talajszemcsék közötti pórusokba. Ez többféleképpen történhet.

A kristályrácsban keletkező radon elsősorban az anyaelem bomlásakor visszalökődés révén jut ki a pórusokba, amit *direkt visszalökődésnek* nevezünk [Bo-84]. Ekkor azonban igen kicsi annak a valószínűsége, hogy a radon atom pont a pórustérben áll meg. Sokkal valószínűbb, hogy az atom behatol a szemközi szemcsébe és ott megáll. Azonban ha a pórustér részben vagy teljesen

telített vízzel, akkor a kilökött radon már nagyobb valószínűséggel áll meg a pórus vizében, ahonnan könnyen kidiffundálhat a póruster levegővel töltött részébe, vagy a vízben maradván, annak áramlásával szállítódik tovább. A szemközti szemcsében lefékeződött atom is kiszabadulhat a sugárrombolt csatorna vízzel történő kémiai oldása során. Ezt a folyamatot nevezzük *indirekt visszalökődésnek* [Fl-78].

A pórusterbe kijutott radon atomok száma függ a kőzet, talaj szerkezetétől, pl. sűrűségétől, porozitásától és nedvességtartalmától. A pórusokba kijutott radon molekuláris diffúzió és advekcio által mozoghat tovább. Az advektív mozgást általában kis nyomáskülönbségek keltik.

A fentiek alapján nyilvánvaló, hogy a mélységi vizek radioaktivitása szoros összefüggésben van a vizek által átjárt kőzetek anyagával, szerkezetével. A víz radioaktivitását azonban hőmérséklete is befolyásolja. Alacsonyabb hőmérsékletű vizek rádiumtartalma általában kisebb, mint a melegebb vizeké, ugyanis a melegebb vizek több ásványianyagot, s általában velük együtt rádiumsókból is többet tudnak kioldani a mélyben lévő magas hőmérsékletű kőzetekből. Ezzel szemben, a termálvizek radonkoncentrációja esetén általában az figyelhető meg, hogy az alacsonyabb hőmérsékletű vizek radonkoncentrációja nagyobb mint a magasabb hőmérsékletűeké, mert a radon oldékonysága, a Henry-törvénynek megfelelően, a hőmérséklettel csökken, hasonlóan más gázokéhoz. Néhány ismert hazai hőforrás radontartalmát láthatjuk a II-5. táblázatban, egy régebbi Magyarország ásványvizeit összefoglaló mű alapján [Sc-57].

II-5. táblázat. Néhány hazai hőforrás vizének radon aktivitáskoncentrációja és hőmérséklete [Sc-57]

Helység, forrás neve	radontartalom (kBqm ⁻³)	víz hőfok (°C)
Miskolc-Tavasbarlang vize	8,14	28
Miskolctapolca, termál medence forrása	13,0	29
Eger, Tükörfürdő forrása	69,20	32
Hévíz, tó vize	10,30	33,9
Hévíz, új 50 m-es fúrás	9,25	43
Budapest Rudas Fürdő, Mátyás-forrás	222	43
Hajdúszoboszló, I. sz. 1090 m-es fúrás	0,19	70

A föld mélyéről feltörő vizek geológiai, kémiai, fizikai stb. okok miatt természetes radionuklidokat tartalmaznak. Ezek a radionuklidok, a vizek különböző célú felhasználása során, a szervezetbe jutnak és bomlásuk során besugározzák azt, így külön figyelmet érdemelnek. Az ivóvízzel az emberi szervezetbe kerülő radionuklidok közül legfontosabbak a radon, amely a gasztrointesztinális traktus hámsejtjeinek sugárterhelését okozhatja, valamint a rádium,

amely "csontkereső" és hosszú felezési idejű radionuklid lévén erősen toxikus. A sugárvédelem egyik legfontosabb szempontja az emberi szervezetbe való bejutás megelőzése. Rádium esetén az élő szervezetben történő besugárzás kritikus útja a táplálékláncon és az ivóvízen keresztüli bevitel [Di-90].

II.1.4 Vizek radon- és rádiumtartalmára vonatkozó szabályozások

Mint a II-1. táblázatban is jól látható, a természetes eredetű háttérsugárzás okozta lakossági átlag sugárterhelés 1/3-a külső, 2/3-a belső sugárterhelésként jelentkezik. Az 1,55 mSv/év belső sugárterhelés két fontos besugárzási útvonalon jön létre, belégzés által a 4/5-e, s a táplálékláncon az 1/5-e jut a szervezetbe. Ha a becslést csak a környezeti radonra (és rádiumra) vonatkoztatjuk akkor a belégzési útvonal legalább tízszer olyan súllyal szerepel, mint a táplálkozási, amelybe az ivóvíz fogyasztás is beletartozik.

Azonban a nagy ²²⁶Ra- és ²²²Rn-tartalmú ivóvizek, ásványvizek, gyógyvizek fogyasztása következtében jelentős belső sugárterhelés érheti elsősorban az emésztőrendszert. A lenyelt vízzel a szervezetbe került radon nagy része eltávozik, mielőtt elbomlana, azonban a lenyelést követő egy órában a radon 90%-a a gyomorban található. Tele gyomorban 1,7-szer több radon bomlik el, mint üresben. Becslések szerint napi 0,3 liter 37 Bq/l radontartalmú víz fogyasztásakor a gyomorban elnyelt dózis 20 µGy/év, az egész testben pedig ennél kb. 100-szor kisebb. A gyomor dóziskonverziós tényezője 0,54 nGy/év/(Bq/m³) [Tó-83]. A rádium lenyelés után a csontrendszerben, illetve a csontszövet felszínén és egyes belső szervekben akkumulálódik, ahol a bomlása során keletkező nagy LET-értékű (Lineáris Energia Transzfer) alfa-részecske megnövelheti a 10-15 éves lappangási idő után kialakuló rosszindulatú daganatok előfordulásának gyakoriságát. Normális természetes háttérű területen a ²²⁶Ra-tartalom számtani átlaga az emberi csontokban 300 mBq/kg, a lágyszövetekben pedig ~5 mBq/kg [Fis-81].

Nemzetközi egészségügyi és sugárvédelmi szervezetek (WHO, ICRP) ajánlásai alapján egyes nemzetek hatóságai megszabják az ivóvizekben maximálisan megengedhető rádium- és radonkoncentrációt. Az *Egyesült Államokban* az ivóvizek radontartalma nem lehet magasabb, mint 11 Bq/l, *Nagy-Britanniában* ez a korlát 100 Bq/l [He-93]. A kisgyerekekre nézve potenciálisan nagy sugárterhelése miatt az ivóvízben lévő radon témája az elmúlt öt évben nagy figyelmet kapott *Svédországban*, ahol 1997. július 1-től a következő korlátok léptek életbe az ivóvizek radontartalmára vonatkozóan egy korábbi ajánlás alapján [Sw-95]: javasolt felső korlát 100 Bq/l; emberi fogyasztásra alkalmatlan 1000 Bq/l, mely korlátok a lakossági vízszolgáltatókra kötelező érvényűek. *Finnországban* a 300 Bq/l-es felső korlát ivóvizek radontartalmára kötelező érvényű a lakossági vízszolgáltatókra 1993 óta [Fi-93]. A *Cseh Köztársaságban* a kötelező felső korlát 50 Bq/l lakossági vízszolgáltatókra és 1000 Bq/l minden fúrott kútból történő vízellátás esetén [Cz-91].

A hazánkban jelenleg érvényben lévő MSZ 62/1-1989 számú szabványban [MSZ 62] lenyeléssel a szervezetbe kerülő ^{222}Rn és a rövid életidejű leányelemek mennyiségére vonatkozóan jelenleg még nincs érvényes korlát. A szabványban a ^{226}Ra emberi szervezetbe való kerülésére vonatkozóan az éves felvételi korlát (ÉFEK) értéke a lakosságra 7×10^3 Bq. Ivóvizekre átlagos 43 mBq/l-es ^{226}Ra -tartalmat [Sz-99] és 730 liter/év-es személyenkénti vízfogyasztást feltételezve az éves felvétel 31,4 Bq ^{226}Ra -ra, ami az ÉFEK-nek mindössze a 0,4%-a.

A WHO 1993. évi ajánlása szerint [WHO-93] az a víz alkalmas emberi fogyasztásra, melynek a fogyasztásából eredő lekötött effektív dózis nem haladja meg a 0,1 mSv-et, ami a természetes forrásokból származó átlagos évi sugárterhelés mintegy 5%-a. Az elfogyasztott vizekben a ^{226}Ra valamint a természetes urán jelentheti azokat az izotópokat, amelyeket a fenti értékelésnél célszerű figyelembe venni. A WHO ajánlás szerinti 0,1 mSv lekötött effektív dózist, napi 2 liter vízfogyasztást alapul véve 623 mBq/l ^{226}Ra aktivitáskoncentráció meríti ki.

Az emberiséget érő ionizáló sugárzás biológiai hatásainak vizsgálata napjainkban is folyik. Újabb kísérletek, epidemiológiai tanulmányok és modellszámolások eredményeinek a fényében újra és újra módosítják a sugáregészségügyi ajánlásokat és a módosítások tendenciája a felső korlátok csökkentését mutatja.

II.1.5 A lekötött dózis fogalma és a vizek fogyasztásából eredő sugárterhelés

Lenyeléssel vagy beléggzéssel a szervezetbe került radioaktív elem rövidebb, hosszabb ideig, egy része akár évtizedekig is a szervezetben marad és belső sugárterhelést okoz. Az egyes szervek, szövetek sugárterhelése, s így az effektív dózis is különbözhet a hasonló sugárzási és bomlási paraméterekkel rendelkező radionuklidok esetén attól függően, hogy azok melyik szövetben akkumulálódnak.

A lekötött dózis fogalma elsősorban olyan radionuklidoktól eredő sugárhatás jellemzésére használatos, melyek hosszabb ideig, egyes esetekben évekig a szervezetben maradnak. Az élő szervezetbe került radionuklidok bomlása során keletkező sugárzás hatása szöveti szinten a lekötött egyenérték dózissal, az egész szervezet szempontjából pedig a lekötött effektív dózissal jellemezhető. A lekötött egyenérték dózist a következőképpen definiálják:

$$H_T(\tau) = \int_0^{\tau} \dot{H}_T(t) dt, \quad (\text{II-1.})$$

melyben $H_T(\tau)$ a T szövet egyenérték dózisa τ időtartam alatt. Ha a τ nincs külön megadva, akkor az integrálási idő felnőttekre 50 év, gyerekekre pedig 70 év; $\dot{H}_T(t)$ a T szövetre vagy szervre vonatkoztatott egyenérték dózisteljesítmény a felvételt követő t időpontban.

A lekötött egyenérték dózishoz hasonló módon definiálható a lekötött effektív dózis:

$$E(\tau) = \int_0^{\tau} \dot{E}(t) dt, \quad (\text{II-2.})$$

ahol $\dot{E}(t)$ a lekötött effektív dózisteljesítmény t időpontban. Az integrálás időtartama most is 50 év felnőttekre és 70 év gyerekekre, a radionuklid szervezetbe kerülésétől kezdve. A lekötött dózis tehát az egyszer a szervezetbe került radionuklidból eredő dózis az egész élettartam, pontosabban 50 illetve 70 év alatt.

A többlet sugárterhelés mértékére az irodalomban különböző adatokat közölnek, az alkalmazott modellektől függően. Azonban ezek az értékek nem térnek el lényegesen egymástól, így nem követünk el nagy hibát, bármelyiket is használjuk számolásainknál.

Számolásaink során a szervezet "lenyelésből" származó belső sugárterhelését az alábbi összefüggés alapján számoltuk [Ka-00]:

$$E_i = K_i \cdot G \cdot c \cdot \tau, \quad (\text{II-3.})$$

ahol E_i a lenyelésből származó lekötött effektív dózis (Sv); K_i esetünkben a ^{226}Ra lenyelési dóziskonverziós tényezője (Sv/Bq); G a vizsgált csoport pl. ásványvíz fogyasztása (liter/nap); c a vizsgált ásványvíz aktivitáskoncentrációja (Bq/l); τ a fogyasztás időtartama (nap).

Az 1993-ban megjelent WHO ajánlásban, az NRPB (National Radiological Protection Board, UK) által megadott $2,2 \times 10^{-7}$ Sv/Bq érték szerepel a ^{226}Ra dóziskonverziós tényezőjeként, mely nem számol a korcsoportokkal. Ezt az értéket a ^{226}Ra felnőtt szervezetben történő metabolizmusa alapján állapították meg, mivel ez egy egész élettartam alatti dózis becslésen alapul, melyben viszonylag rövid időtartamot jelent az érzékenyebb gyermekkor [WHO-93].

A rádium a szervezetben a kalciumhoz hasonlóan viselkedik, "csontkereső" elem. Mivel a gyerekek csontrendszerének fejlődése erősen korfüggő, ezért a különböző korcsoportoknál a szervezetbe került rádium eltérő sugárterhelést eredményez. A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség 1996-ban, magyar fordításban megjelent Biztonsági Szabályzatában (Biztonsági Sorozat No. 115), már a korcsoportok különböző érzékenységet is tükröző dóziskonverziós tényezők szerepelnek [NAÜ-96]. Az általunk vizsgált vízminták rádiumtartalma által okozott sugárterhelés becslése során ezekkel a dóziskonverziós tényezőkkel számoltunk:

< 1 éves gyerekeknél	$4,7 \times 10^{-6}$ Sv/Bq;	7-12 év között	$8,0 \times 10^{-7}$ Sv/Bq
1-2 év között	$9,6 \times 10^{-7}$ Sv/Bq;	12-17 év között	$1,5 \times 10^{-6}$ Sv/Bq
2-7 év között	$6,2 \times 10^{-7}$ Sv/Bq;	>17 év	$2,8 \times 10^{-7}$ Sv/Bq

A gyerekek csontrendszerének fejlődése erősen korfüggő, legintenzívebb egy éves kor alatt és 12-17 éves kor között, a serdülőkorban. Ezekben az időszakokban a gyerekek kalcium metabolizmusa is nagyon intenzív. Mivel a

rádium kémiai sajátosságai tekintetében nagyon hasonló a kalciumhoz ezért a csontba beépülő radioizotóp a különböző korcsoportoknál jelentősen eltérő sugárterheléseket eredményez. Ez nyilvánul meg a dóziskonverziós tényezők eltéréseiben is. Látható, hogy a lenyeléssel a szervezetbe kerülő rádiumra legérzékenyebbek az egy év alatti kisgyerekek és a 12-17 éves serdülők.

A szakirodalomban egyelőre nem ismeretesek olyan bizonyított esetek, amikor vízben oldott radon az emberi szervezetbe kerülve egészségi károsodást okozott volna. Több publikációban számoltak be kísérletekről és számításokról, amelyekben a lenyelt radon dóziskonverziós tényezőit határozták meg. A kapott adatok szerint a radon egészszetre vonatkozó dóziskonverziós faktora 0,5-4 nSv/Bq tartományban változik [An-64, Dö-64, Cr-89, Br-92].

II.1.6 Vizek ²²²Rn- és ²²⁶Ra-tartalmának meghatározására vonatkozó nemzetközi és hazai mérések

Napjainkban és az elmúlt évtizedekben világszerte egyre nagyobb figyelmet fordítanak a természetes eredetű radioaktív izotóptól származó sugárterhelések becslésére, valamint ezen izotópok mennyiségi és minőségi meghatározására. A témával kapcsolatban megjelent, igen nagy számú közlemény közül szeretnék néhányat bemutatni, amelyek összehasonlíthatók a dolgozat tárgyát képező mérések adataival.

Figyelmemet elsősorban felszínalatti vizek radon- és rádiumtartalmára összpontosítottam. A könnyebb áttekinthetőség kedvéért az adatokat a II-6. táblázatban foglaltam össze.

II-6. táblázat. Vizek ²²²Rn- és ²²⁶Ra-tartalma irodalmi adatok alapján

Helyszín	Víz típusa	²²² Rn (Bq/l)	²²⁶ Ra (Bq/l)	Irodalmi forrás
Svédország	ivóvíz vízmű által	átlag 38	-	[Åk-96]
	ivóvíz ásott kútból	5-80		
	ivóvíz fúrott kútból	213-500	0,001-0,09 0,01-0,25	[Åk-88]
	ivóvíz ásott kútból	10-300		
	ivóvíz fúrott kútból	50-500		
Finnország	ivóvíz	átlag 24,8	átlag 0,0037	[As-80]
Ausztria	palackozott ásványvíz	3,7-37	< 0,048	[Sc-89]
Spanyolország	palackozott ásványvíz	-	0,06-1,86	[Sá-99]
Bulgária	palackozott ásványvíz	-	0,392	[Ph-84]
Franciaország	palackozott ásványvíz	-	0,163	[Ph-84]
Görögország	palackozott ásványvíz	-	0,237	[Ph-84]
Szlovénia	ásvány- és termálvíz	0,05-75	< 0,51	[Ko-90]

Brazília	ásványvizek	-	0,37-0,63	[Pi-88]
Anglia	fürdők termálvizei		0,37-0,53	[An-74]
Horvátország	ivókúrára használt termál- és ásványvíz	-	0,104-3,2 0,104-0,82	[Ma-96]
Magyarország	palackozott ásványvíz	-	0,005-2,96	[So-01]
Magyarország	ivóvíz	0,31-11,2	átlag 0,043	[Sz-99]
Mátraderecske	ivóvíz (ásott kút)	30-350	-	[Ka-96]
Budapest, Rudas fürdő	Attila-forrás Juventus-forrás Hungária-forrás	300-355 139-305 252-258	1,62-1,68 - -	[Ka-96]
Budapest, Rudas fürdő	Attila-forrás Juventus-forrás Hungária-forrás	211 126 67	2,15 - -	[Sz-96]

II.2 TÖRTÉNETI RÉSZ

II.2.1 A radon története

A radonprobléma történelmi gyökerei a 15. századig nyúlnak vissza, mégis az utóbbi évtizedekben nőtt meg iránta az érdeklődés. Azonban az általa okozott sugárterhelés vizsgálatának és elhárításának hosszú a története, amelyet az [ICRP-65] alapján foglalok nagyon röviden össze.

1470 körül kiterjedt ezüsbányászat indult meg Schneebergben, egy kis szászországi város környékén, az Ércheység északi oldalán. Ugyanekkor a hegység déli, csehországi oldalán is bányásztak ezüstöt Joachimsthal környékén. Később a 16. században a schneebergi bányászoknál szokatlanul magas tüdőbaj miatti halálozási arányt figyeltek meg. Ennek a betegségnek, melyet később "schneebergi betegségnek" neveztek el, a 17. és 18. században még tovább nőtt a gyakorisága, az ezüst-, réz- és kobaltbányászat fokozódása miatt. Végül Haerting és Hesse 1879-ben azonosította a betegséget a tüdőrákkal, és megfigyelték, hogy a fenti bányákban dolgozó bányászok 75%-a tüdőrákban halt meg. Érdekes egybeesés, hogy az elhunyt bányászok sírkeresztjei olyan formájúak, mint a mai sugárveszélyt jelentő jel.

A tüdőrák okának ekkor az arzént, a szilikátos kőport és a toxikus fémeket tartották. A radioaktivitás felfedezését követően, a Curie házaspár rádiumot (^{226}Ra) és polóniumot (^{210}Po) vont ki a fenti lelőhelyeken bányászott ércekből. Azonosították az ún. rádium emanációt, melyet később radonnak (^{222}Rn) neveztek el. Néhány évvel később, az első radonmérések bizonyították a schneebergi és a joachimsthal bányákban a víz és a levegő magas radontartalmát. Az 1920-as években Ludewig és Lorensen mutatta ki a radon és a

tüdőrák közötti összefüggést, a betegség okaként pedig a radontartalmú levegő tartós belélegzését jelölte meg. További 30 év volt szükséges ahhoz, hogy rájöjjenek a tüdő megbetegedését nem a radon, hanem rövid felezési idejű bomlástermékei okozzák, melyek aeroszolon tapadva belégzés útján jutnak a szervezetbe.

A 80-as években ismerték fel, hogy a földkéregből származó radon nemcsak a bányákban, hanem minden zárt helyiségben feldúsulhat. E jelenség hatására pl. rosszul szellőztetett lakásokban és munkahelyeken, főleg a téli hónapokban magas radonkoncentráció is kialakulhat. Ezáltal a probléma közegészségügyi kérdéssé vált. Napjainkban már tudományos intézetek, nemzetközi szervezetek részletesen foglalkoznak a "radonkérdéssel" és nemzetközi ajánlások "szabályozzák" a megengedhető szinteket.

II.2.2 A rádium története

A rádium felfedezése szorosan összekapcsolódik a radioaktivitás felfedezésével. Kísérletei során 1895-ben W. K. Röntgen egy nagy áthatolóképességű, ionizáló sugárzást fedezett fel, amit X-sugárzásnak nevezett el. Ez a felismerés lázas kutatómunkák sorát indította el. Alig egy évvel később, A. H. Becquerel francia fizikus azt tapasztalta, hogy az urániumsók aktiválják a közelükbe helyezett, fénytől elzárt fotolemezeket és ionizálva a levegő részecskéit kisütik a feltöltött elektroszkópot. Kutatásai alapján megállapította, hogy az észlelt sugárzás kizárólag az uránium jelenlétével van kapcsolatban. A következő években Becquerel érdeklődése a Zeeman-effektus felé fordult, így a kutatás folytatását asszisztensnőjére Marie Skłodowska-Curie-re bízta. A Curie házaspár a továbbiakban azt vizsgálta, hogy az új sugárzás az uránhoz, mint elemhez van kötve, vagy esetleg más elemek is mutatnak hasonló jelenséget. Munkájuk nyomán 1898-ban, új radioaktív elemeket ismert meg a tudomány: a polóniumot és a rádiumot, mely kémiai sajátágaiban a báriumhoz hasonló. Legelőször Marie Curie vizsgálta és írta le a rádium és rádiumtartalmú vegyületek tulajdonságait, valamint elsőként izolálta a fém rádiumot. A mindössze 0,1 gramm tiszta rádium előállításához 8 tonna uránszurokérc-üledéket dolgozott fel a Curie házaspár 4 év emberfeletti munkával. Az első hiteles Ra-forrást tartalmazó ampullát Marie Curie sajátkezűleg zárta le. Az 1910-ben megrendezett radiológiai kongresszuson az aktivitás első mértékegységéül 1 gramm rádium aktivitását választották, mely a Curie elnevezést kapta ($1 \text{ Ci} = 1 \text{ g rádium aktivitása} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Bq}$).

A rádium a felfedezését követően hamar ismertté vált. A tudomány, az ipar és a mindennapi élet számos területén alkalmazni kezdték. Alkalmazták pl. az ipari radiológiában anyagszerkezeti vizsgálatokhoz; a gyógyászatban radioaktív sugárforrásként; ionizáló tulajdonságait felhasználták elektroncsöveknél; cink-szulfiddal keverve a lumineszcens tulajdonságokat növelték és így óraszámlopok festésére használták. Legnagyobb hírnévre azonban a gyógyászatban tett szert. Az orvostudományban sikeresen alkalmazták

rákbetegségek és kevésbé ismert betegségek (pl. ízületi gyulladás, magas vérnyomás, gyermekbénulás) gyógyítására, ezáltal az emberek "csodatevő szert" láttak benne. Sokan fiatalító rádiumkúrákat kértek, mely során a rádiumot injekció formájában vitték be a szervezetbe. Használata annyira elterjedt, hogy mindennapi fogyasztási cikkekben is megjelent. A boltokban rádiumtartalmú ásványvizeket, fürdőszókat, hajszeszeket, borogatásokat, erősítőszereket, arckrémeket, fogkrémeket árultak. Ez az elem felfedezésével nagy hasznot hozott az egész világon, de az élő szervezetre kifejtett tényleges hatását ekkor még nem ismerték.

Akik először felhívták a figyelmet a rádium használatában rejlő veszélyekre, maguk a felfedezők voltak, ugyanis a Curie házaspár egészsége a rádiummal való találkozás első napjaitól kezdve romlani kezdett. Marie Curie 1903-ban, a doktori értekezésében a rádium által kibocsátott sugárzás veszélyességéről ír: "Körülötte minden aktívvá válik: a lebegő porszemek, a ruhák még a levegő is". Az értekezés "Fiziológiai hatások" című fejezetében, a sugárzás élő szövetekre gyakorolt, romboló hatásait írta le. Férje három évvel később, utolsó publikációjában a rádiumból jövő sugárzás, egerekre és tengeri malacokra gyakorolt toxikus hatására hívta fel a figyelmet. 1911-ben Pusey így írt a rádium biológiai hatásairól: "Azon kívül, hogy roncsolja a bőrt, stimulálja az anyagcserét, égési sérülést okoz, a röntgensugárzáshoz hasonlóan rákot is előidéz". Alkalmazását csak krónikus folyamatok elleni küzdelmek és rákos sejtek roncsolása esetén javasolta. Néhány év csend után, 1924-ben kezdtek újra foglalkozni a rádiummal, amikor egy amerikai fogorvos új betegséget fedezett fel, a rádium tartalmú festékekkel dolgozó óralap-festők körében. A betegséget "radium jaw"-nak (rádium-száj) nevezte el és megfigyelte az ilyen munkakörben dolgozók nagy halandóságát és megbetegedését. Az ezt követő években egyre több munkahelyi mérgezésre derült fény, és ekkorra már számos kutatás támasztotta alá azt a tényt, hogy a radioaktív sugárzás káros az élőlényekre. Az újonnan felfedezett veszélyek vezettek 1928-ban az ICRP elődjének, a Nemzetközi Röntgen- és Rádiumvédelmi Bizottság megalakulásához. Marie Curie két kollégája, és saját maga is a rádiumnak esett áldozatul. 1934-ben halt meg vérszegénységben. Senki nem gondolta volna, hogy élete büszkesége és értelme lesz halálának okozója.

Az egykor csodaszernek hitt elem ma már csak egy név a mérgező anyagok listáján. Az alkalmazott sugárforrásokban kevésbé mérgező elemekkel helyettesítik. Az elem, melyet egykor rejtett kincsként ástak ki a földből, mára visszakerült ugyanoda, mint elásott hulladék.

A fent bemutatott alfejezetet a "The Environmental Behaviour of Radium" című könyv alapján foglaltam össze [Wi-90].

II.2.3 Az ásvány- és hévíz hasznosítás rövid története

Napjainkban a hazai fürdőkultúra "felvirágzásának" és az ásványvíz-fogyasztás egyre növekvő népszerűségének lehetünk tanúi. Talán nem is

gondolnánk, hogy az ásvány- és gyógyvizek hasznosítása évszázadokra nyúlik vissza, melynek magyarországi történetét Borszéki Béla *Ásványvizek, gyógyvizek* című könyve alapján foglalom össze [Bo-98].

Hazánkban az első fürdőket a Pannóniát meghódító rómaiak építették közel 2000 évvel ezelőtt, melynek egyik legszebb maradványa, a ma is látható óbudai Aquincum. A honfoglaló magyarok is termálvizek köré emelték településeiket. A honi fürdőkultúrára nagy hatással volt a 150 éves török uralom, elég csak a budai fürdőkre gondolni, de a balti népek és az orosz fürdőkultúra is befolyással volt a hazai fürdőzésre. Elsőként Georgius Werner 17. században megjelent magyarországi hőforrásokat és fürdőket ismertető könyvében találunk utalást arra, hogy hazánkban már a 15-16. században fogyasztottak ásványvizet. Történeti szempontból nézve az ásvány- és gyógyvizek között nincs konkrét határvonal, megkülönböztetésük csak a 19. század második felében kezdődött el, végérvényesen pedig az 1929. évi XVI. törvényekben lefektetett "Fürdőtörvény" határolta el egymástól az ásvány-, gyógy- valamint ivóvizeket.

Az első hazai vízelemzések a 18. század közepén kezdődtek el Mária Terézia utasítására. A rendelet kötelezte a városi és megyei orvosokat a magyarországi ásványvizek összeírására, vegyi elemzésére és gyógyhatásuk megállapítására. A felmérés célja az volt, hogy a vizsgált ásványvizeket mind külföldön mind belföldön kereskedelmi forgalomba hozzák és megakadályozzák a külföldi ásványvizek behozatalát. Talán ebben az időszakban foglalkoztak legtöbbet az ásványvizekkel, valamint az orvosok és kémikusok egyaránt feladatuknak tekintették a vizek széleskörű hasznosítását. Említésre méltó Wintler József Jakab munkássága, aki az ásványvizek elemzésén túl analitikai módszereket is kidolgozott, így elsőként már minőségi elemzéseket is végzett, a mennyiségi elemzéseken túl. Valamivel később, a 18. század második felében indult útjára az ásványvizek környezetének földrajzi, közzettani és földtani tulajdonságainak vizsgálata is, Kitaibel Pál kutatásai alapján. Ő ismerte fel elsőként a geológia, kémia és balneológia szoros egységét. A XIX. században a MTA pályázatot hirdetett a magyarországi ásvány- és gyógyvizek hasznosítására, amelyet Török József 1859-ben kiadott, *A két magyar haza elsőrangú gyógyvizei és fürdőintézetei* című értekezése nyert meg. Munkájában csoportosítva leírta és elemezte a magyarországi és erdélyi vizek analízisének eredményét, sőt felhasználásukra is javaslatot tett. A munka egyik legnagyobb értéke, hogy tartalmazza a magyarországi ásványvizek addigi bibliográfiáját is. A vízelemzések területén kiemelkedő munkát végeztek Than Károly, Hankó Vilmos, Weszelszky Gyula és Lengyel Béla. A hazai és import ásványvizek ellenőrző vizsgálatát, külön erre a célra létrehozott, ásványvíz-elemző állomáson végezték, melynek vezetője Lengyel Béla volt.

A tudományok előrelépése, főleg a mélyfúrás-technika területén bekövetkezett fejlődések a fürdőkultúra újabb fellendülését eredményezték. A mélyfúrások korszaka előtt csupán azokat a hévízforrásokat ismerték, amelyek természetes úton törtek a felszínre. Ezek közé tartoztak a Duna-partját kísérő budapesti gyógyforrások vagy például Hévíz. Azonban ásvány- és hévíz jellegű mélységi

vizeink túlnyomó többsége csakis mesterséges feltárásokkal, mélyfúrású kutak segítségével hozható felszínre. Ezen a területen Zsigmond Vilmos tevékenysége új lendületet adott a vízfeltárásnak. Szorgalmazta, hogy növeljék a nagy múltú harkányi és margitszigeti források vízhozamát. Különleges helyet foglal el az ásvány- és gyógyvizek történetében a kilenc és fél évig (1868-1878) tartó városligeti fúrás. Ekkoriban a kút, 970 méteres mélységével Európa második legmélyebb kútja volt. A híressé vált fúrás után egyre inkább előtérbe került a fúrásos kutatás és feltárás. A kutatásokra és feltárásokra alapozva Chyzel Kornél 1886-ban elkészítette Magyarország gyógyhelyeinek és ásványvíz lelőhelyeinek térképét, amely több mint 300 helyet ismertet, így a hasonló térképek sorában egyedülálló volt a világon. A híres, ismert és nemzetközileg is elismert vidéki gyógyközpontjaink (Balatonfüred, Hévíz, Harkány, stb.) a 18. század végén, a 19. század elején alakultak ki és napjainkban is az ország idegenforgalmának fontos részét képezik.

1891-ben megalakult az Országos Balneológiai Egyesület, melynek egyik fő célja az volt, hogy széles körben ismertessék és népszerűsítsék a hazai fürdőket és ásványvizeket.

Sajnos Magyarország a trianoni békeszerződéssel (1920) elvesztette ásvány- és gyógyvizeinek legjava részét. Az újabb lelőhelyek feltárását nagyban elősegítette a szénhidrogén kutatás, mely gyakran hozott a felszínre olaj helyett kitűnő minőségű termálvizet (pl. Hajdúszoboszló). Később az 1920-as '30-as években hévízfeltárás céljából beindult kútfúrások újabb eredményeket hoztak: 1927-ben a szegedi Anna kutat, 1928-ban a pesterzsébeti kutat, 1935-36-ban pedig a margitszigeti Magda II. kutat tárták fel.

Az ásvány- és gyógyvíztelepek nagy része a II. Világháborúban súlyos károkat szenvedett. Az újjáépítés nehézkes és költséges volta nagyban visszavetette az ásványvíztermelést és fogyasztást Magyarországon. Majd a '60-as években megindult idegenforgalom hatására a hazai "vízfogyasztás" lassú fejlődésnek indult. Mára a beruházások és a technológia fejlődése, illetve a növekvő fogyasztói igény nagyban felgyorsították ezt a folyamatot. Az üdítőital gyártás ezen belül is az ásványvíz palackozás az egyik legdinamikusabban fejlődő élelmiszeripari ágazat. Ami pedig az előrejelzéseket illeti, határozottan állítható, hogy a fogyasztás a következő években emelkedni fog, így Magyarország ivóvízbázisai, ásvány- és gyógyvizeket adó forrásai jelentősen felértékelődnek. Napjainkban a fürdőkultúra felvirágzásának újabb lendületet ad a Széchenyi terv, amely a 21. század elején a gyógyturizmus fejlesztését segíti.

II.2.3.1 ELŐÍRÁSOK, SZABVÁNYOK

Egy átlagos felnőtt ember napi folyadékigénye 2,5-3,0 liter, melynek legalább a felét ivóvíz formájában kell, kellene elfogyasztani. Ez nem kevés mennyiség, így nem mindegy, hogy a vízzel együtt milyen anyagok kerülnek be szervezetünkbe. Itt tartom fontosnak, a hétköznapi életben is igen gyakran

használt ivó-, ásvány-, gyógy- és termálvíz (hévíz) fogalmak tisztázását, valamint a velük szemben támasztott követelmények leírását [BF-96], [MF-97].

Az *ivóvízzel* szemben támasztott követelményeket röviden a következőképpen foglalhatjuk össze. Nem tartalmazhat olyan anyagokat és élő szervezeteket, amelyek az emberi egészséget bármilyen módon károsíthatják. Tartalmaznia kell viszont mindazokat az életfontosságú ásványi anyagokat (kalcium, magnézium, vas), amelyek a szervezet számára nélkülözhetetlenek. Hazánkban a vezetékes vizek kb. 10 %-a emberi fogyasztásra nem, vagy alig alkalmas. Ezekben a helyeken az ivóvízhez palackozott vagy zacskós formában lehet hozzájutni.

Az *ásvány- és gyógyvizekkel* szemben támasztott követelmények egy kicsit összetettebbek. Az Európai Unióban nincs még nemzetközileg elfogadott egységes minősítési rendszer az ásványvizekre. Hazánkban, az 1996 februárjában hatályba lépett törvény értelmében, ásványvíznek minősül minden olyan víz, amely literenként legalább 1000 mg oldott ásványianyagot tartalmaz vagy 500-1000 mg/l közötti oldott ásványianyag-tartalom esetén a nátriumtartalma kisebb 100 mg/l-nél és legalább egy táplálkozás-fiziológiai szempontból fontos összetevője (kalcium-, magnézium-, fluorid-, jodid-tartalom) alapján megfelel az előírtaknak. Ez lehet természetes víz, de lehet mesterségesen, sókeverékek feloldásával előállított víz is. Ha a jogszabályok előírják, idővel ezen utóbbi vizek talán megkülönböztető névvel kerülnek forgalomba. Gyógyvíznek minősül minden olyan ásványvíz, amelynek oldott ásványianyag- vagy gáztartalma következtében, orvosi kísérletekkel bizonyított gyógyhatása van, azonban a biológiai vízigény kielégítésére nem alkalmas. A gyógyvízzé minősítést gyakran több éves vizsgálat előzi meg. A minősítés megadása a Népjóléti Minisztérium Országos Gyógyhelyei és Gyógyfürdőügyi Főigazgatóságának hatáskörébe tartozik.

További előírás, hogy ásvány- és gyógyvizet palackozni csak a vízkivétel helyén vagy annak közvetlen közelében lehet, nehogy károsodjon a víz kémiai vagy mikrobiológiai szempontból a szállítás során, és CO₂ kivételével szigorúan tilos bármilyen vegyi anyagot hozzáadni.

A *termálvíz és a hévíz* ugyanazon kritériumoknak eleget tevő víz kétféle elnevezése. Minden olyan a természetben előforduló vizet, melynek hőmérséklete a földfelszínre jutás helyén az adott hely évi középhőmérsékleténél magasabb, termálvíznek nevezzük. Azonban gyakorlati okokból a magyar jog 30 °C feletti egységes hőmérsékleti érték esetén teszi lehetővé a hévíz elnevezés használatát.

II.2.3.2 A FELSZÍNALATTI VIZEK ELHELYEZKEDÉS SZERINTI CSOPORTOSÍTÁSA

A felszínalatti vizeket elhelyezkedésük jellege, utánpótlásuk jellemző iránya szerint is csoportosíthatjuk:

A *talajvíz* a felszínalatti első vízzáró réteg felett összegyűlő víz, amely a felszínre hulló csapadékból, a légköri nedvességből, a felszíni vizekből és a források feltörő vizéből származik.

A *parti szűrésű víz* felszíni vízfolyással vagy tározóval érintkező porózus kőzeteken a mederből átszivárgó víz. Szennyeződésekkel szemben igen érzékeny.

A *rétegvíz* az első vízzáró réteg alatti üledékben, porózus kőzetekben sokszor több ezer méter mélységig terjedően helyezkedik el. Közvetlen utánpótlása általában nincs.

A *karsztvíz* a karsztosodott kőzetek repedéseit, hasadékait és üregeit tölti ki. Ezen belül nyílt és fedett vagy mély karsztot különböztetünk meg.

A felszínalatti vízkészletek utánpótlása nem közvetlenül a csapadékból történik, hanem a felszínről és a folyómedrekből származó beszivárgásból és a magasabban fekvő területek felőli oldalirányú áramlásból. Ennek a függőleges és oldalirányú utánpótlásnak az aránya területenként változik.

II.3 MAGYARORSZÁG HÉVÍZKÉSZLETE

Magyarországot sajátos földtani, vízföldtani és geotermikus adottságainak köszönhetően a mélységi vízelőfordulások rendkívüli gazdagsága jellemzi. E vizek egy része természetes úton, hideg- és melegvizes (termominerális) források alakjában jut a felszínre, azonban túlnyomó többségüket csakis mélyfúrású kutak segítségével, mesterséges úton lehet "kitermelni". Magyarországon kb. 60 000 vízkút működik, s ebből 1152 hévízkútnál 30 °C a felszín feletti vízhőmérséklet. A Függelék 1. ábráján látható térkép részletezi a hazai fontosabb ásvány- és hévizek típusait, az egyes vízadó rétegek korát, a jelentősebb hévíztároló összletek elterjedését, azok vizének kémiai jellegét, hőmérsékletét, valamint a hidrodinamikailag összefüggő víztároló rendszerek hőmérsékletét. Ezen a térképen jelöltük meg az általunk vizsgált hévizek és palackozott ásványvizek kútjainak földrajzi helyzetét is.

A magyar medence pozitív geotermikus anomáliájú terület, ahol a földi hőáram átlagos értéke 90-112 mW/m², a reciprok geotermikus gradiens 15-18 m/°C, az átlagos hőmérsékletlépcső pedig 50-70 °C/km. Ebből következően 1 km mélységben az átlagos hőmérséklet 70 °C, 2 km-ben pedig 120 °C, így egy 2-2,5 km talpmélységű termálkút 90-100 °-os hévizet ad. Ez a geotermikus anomália, a feltételezések és a kutatások alapján azzal magyarázható, hogy hazánk területén a földkéreg vastagsága 23-26 km, a szárazföldi kéreg átlagos 33 km-es vastagságával szemben. A viszonylag kis mélységben lévő földköpeny magmatömegéből származó konduktív és radiációs hőáramok, a földkérgen át a medenceüledékbe kerülnek és felmelegítik az ott található mélységi vizeket is [Ko-91].

II.3.1 Felszínalatti hévíztárolók

Hazánk területén a mélységi vízkészlet nagy része két nagy kiterjedésű földtani képződményben alakult ki, nevezetesen:

- a triász időszi repedezett-hasadékos, részben karsztosodott karbonátos közettömegben;
- a középső pliocén vagy felsőpannóniai, vízszintes településű homok-homokkő sorozatban, ún. vízemelet rendszert alkotva.

E regionális nagyrendszerek mellett számos korlátozott kiterjedésű lokális mélységivíz tároló fordul elő. A II-7. táblázatban összefoglaltuk a földtörténeti középkor és újkor időbeli felosztását, mert a hévizeket adó rétegek nagy része ezekhez a korokhoz tartozó időszakokban keletkezett.

a) Triász időszi mélységivíz-tároló rendszerek

A mélyfúrások révén kiderült, hogy a mészkőhegységek lesüllyedt tömbjeiben csaknem mindenütt nagy mennyiségű hévíz tárolódik, melyeket fiatalabb vízzáró üledékek takarnak, így nem juthatnak természetes úton a felszínre. A legfontosabb hévíztároló a földtörténeti középkor üledékein belül is a felső triász (a triász időszak utolsó harmada) időszi mészkő és dolomit. A helyenként 4-5 km vastagságú karbonátos közettömeget váltakozó sűrűségű és méretű törések, hasadékok és repedések hálózata járja át, melyek vízáramlási pályákat képeznek. A karsztos mészkőben és dolomitban felhalmozódott hévizek mennyisége elsősorban ezen törések, repedések nagyságától függ. A hegységperemeken kifejlődött tektonikus zónák több helyen a természetes forrásműködés színterét is jelentik (pl. a Budai Termál Vonal a Duna jobb partján).

A karbonátos kőzetekre telepített kutak általában nagy hozamúak és különböző mértékben képesek a megcsapolás után pótolni vizüket, de hosszú ideig, akár 90-100 évig is működhetnek. Ha van aktív vízutánpótlás, akkor a kutak működését és vízhozamát csupán az előregedésük befolyásolja. Hőmérsékletük hasonló módon szeszélyes, mert a repedések, hasadékok mentén a víz függőleges irányban is áramolhat alig változtatva hőmérsékletét a mélységgel. Ugyanakkor oldalirányban mozogva kis távolságokon belül is nagy hőmérséklet-különbségek alakulhatnak ki [Ju-87].

II-7. táblázat. Földtörténeti korok [Ju-87]

Kor		Időszakok, ill. korok	Főbb kőzetek
Újkor	Negyed idősziak	millió év	Jelenkor
		2,5-től	Pleisztocén (jégkorszak)
	a mai ;		futóhomok
			homok, kavics, mésztufa, lösz

Harmad időszak	10-től	Pliocén (Felső Pannon)	homok, agyag, homokkő
	25-től	Miocén (Alsó Pannon)	riolit, andezit, vulkáni tufák
	37-től	Oligocén	agyag, homokkő
	67-től	Eocén, Paleocén	andezit, mészkő, homokkő, márga
Középkor (mezozoikum)	137-től	Kréta	mészkő, márga, kavicskő, homokkő
	195-től	Jura	mészkő, homokkő, zöldpala
	235-től	Triász	dolomit, mészkő, homokkő

b) Felső pannóniai mélységivíz-tároló rendszerek

Az előbbinél is jelentősebbek, a Felső Pannon idején az ország területének közel 2/3 részén képződött nagy vastagságú, néhol a 2 km-t is meghaladó agyagos-homokos, homokköves üledékekben elhelyezkedő hévizek. Ebben a rétegvizet tároló porózus rétegeket félig áteresztő vagy vízzáró rétegek különítik el egymástól, tulajdonképpen egymás feletti emeletes tárolórendszert alkotva. Ezekben a földtani képződményekben tárolt vízkészlet 2500 km³-re, míg a triász időszaki karbonátos hasadékos közettömegben tárolt 50 km³-re becsülhető. A rétegvíz készletet 400-2500 méteres mélyfúrású kutak hozzák a felszínre, melyek vízhozama pár száz és 1-2 ezer liter/perc között változik. A kutak nagy része 30-60 éve üzemel, azonban a rétegenergia lecsökkenése miatt a kezdeti pozitív artézi víztermelést fokozatosan a bűvárszivattyús termelés váltja fel. Rétegenergiának nevezzük a folyadék (vagy gáz) tároló kőzetekben a földtörténeti idők folyamán elraktározott természetes energia-készletet, melynek tényezői a nyomás, hőmérséklet, gáztartalom és a víz fizikai-kémiai sajátosságai.

II.3.2 A mélységi vizek összetétele, jellege és keletkezésüket meghatározó tényezők, folyamatok

Hazai felszínalatti vizeink kémiai összetétele és jellege meglehetősen változatos. Ezek kialakulását több tényező is befolyásolja.

Az egyes kőzetek különbözőképpen oldódnak, ezért a természetes vizekben az egyes oldott alkotórészek különböző koncentrációban fordulnak elő. A vizek jellegét ezen alkotók egymáshoz képesti aránya illetve domináns jellege adja meg. Összetételük alapján a termálvizeket a következő fő csoportokba sorolhatjuk: 1. *Egyszerű termális vizek*, melyek oldott anyagokban és gázokban szegények, összes oldott ásványianyag-tartalmuk kevesebb mint 1 g/l; 2. *Szénsavas (savanyú) vizek*, melyek több mint 1g/l szabad szénsavat

tartalmaznak; 3. *Alkáli-hidrogén-karbonátos (alkalikus) vizek*, melyekben a kationok közül a nátrium-ioné az anionok közül pedig hidrogén-karbonát-ioné a vezető szerep; 4. *Kalcium-magnézium-hidrogén-karbonátos (földes-meszes) vizek*. A hazai langyos- és melegvíz-forrásaink jelentős része (pl. a budapestiek is) ide sorolható; 5. *Keserűsós (szulfátos) vizek*; 6. *Konyhasós (kloridos) vizek*, melyekben a nátrium- és a klorid-ionok domináns jelenléte jellemző; 7. *Vasas vizek*, melyek literenként 10-20 mg ferro-, esetleg ferriiont tartalmaznak; 8. *Kénes (szulfidos) vizek*, melyek kémiai jellegük alapján más csoportba is besorolhatók; 9. *Jódos-brómos vizek* kémiai jellegük alapján a kloridos vizekhez tartoznak, de gyógyászati szempontból külön csoportba sorolhatók, ha a jód mennyisége meghaladja az 1mg/l-t, a brómé pedig az 5 mg/l-t; 10. *Radioaktív vizek*.

A víztároló réteget alkotó kőzetek oldódásának mértéke függ a kőzet szerkezetétől, mellyel a víz érintkezik. Így a vizek jellegében tárolókőzetük szerint határozott különbségek adódnak.

A felső pannóniai rétegvizek legnagyobb része NaHCO_3 -os, mélyebben pedig NaHCO_3 -os kloridos típusú. Összes oldott sótartalmuk 2-4 g/l között váltakozik, viszont klorid-ion tartalmuk többnyire csekély, csak különleges földtani környezetben éri el az 1-2 g/l értéket (Tiszavasvári). Ugyanez jellemző a halogénekre is.

A triász kori rétegek vizei, a tárolókőzetnek megfelelően CaCO_3 , MgCO_3 típusúak, 0,8-12,5 g/l összes oldott sótartalommal. A nagy mélységben lévő és a hidrológiai ciklusból kirekesztett tárolók vizében a klorid-ion rendszerint megnövekszik.

Befolyásolja az oldódást a víz hőmérséklete, mozgásának sebessége és a kőzetek elhelyezkedése is. Magasabb hőmérsékletű vagy lassabban folyó víz általában több ásványi anyagot képes kioldani, mint a hideg gyorsabban folyó víz. A lapos, enyhe dőlésű kőzetekből több míg a meredek dőlésűből kevesebb ásványianyag oldódik ki.

A felszínalatti vizek jellegére továbbá nagy hatással van a vízkörforgás, az ún. hidrológiai ciklus. Ez a vízkörforgás a légkörre, a vízburokra és a kőzetburokra terjed ki, kb. 1 km-es mélységtől mintegy 10 km-es légköri magasságig. A hidrológiai ciklussal kapcsolatban álló kis vagy közepes mélységű víztárolók vize híg, mivel ezen a szinten aktív vízkicserélődés folyik. Ezekben a víztároló rendszerekben a víz a hidraulikus-gradiens és az áteresztőképesség függvényében áramlik.

A hidrológiai ciklus során a vizek hosszabb-rövidebb időt töltenek a felszín alatt. Azt az időt amit a víz a felszín alatt tölt nevezzük a víz korának. A nagy mélységű, zárt jellegű víztárolók nem vesznek részt a vízkörforgásában, utánpótlást nem kapnak, így vizük erősen koncentrált. Ezek az ún. magmatikus eredetű vizek.

A hazai mélységi vizekben gyakran fordulnak elő oldott és szabad gázok, melyek különböző földtani és geokémiai folyamatok eredményeként képződtek. Leggyakoribb gázok: a szén-dioxid, metán, nitrogén, kénhidrogén és a radon.

Régebben úgy találták, főleg mérés technikai nehézségek miatt, hogy a radon ritkábban fordul elő. Azonban ma már tudjuk, hogy változó mértékben minden felszínalatti víz természetes velejárója.

II.3.3 Budapest hévizei

Budapest földrajzi fekvése különleges: a Duna vonala által elválasztott két eltérő jellegű táj találkozásánál alakult ki. A jobb parton (budai oldal) a Budai-hegység emelkedik a magasba, a bal parton (pesti oldal) az Alföld szélén állunk. A különleges hidrogeológiai viszonyok eredményeként az észak-déli irányú fő törésvonalat követő Duna szintjén, az erózióbázison, a budai oldalon számos forrásból szabadon ömlik a forró, meleg és langyos víz, a pesti oldalon viszont csak több száz méteres fúrásokkal érhető el ugyanazok a vízadó geológiai rétegek [Me-98], [Ch-80]. Budapest hévíz előfordulásai a Függelék 2. ábráján láthatók.

Arheológiai kutatások szerint Budapest területén az első nyilvános fürdő még a római uralom idején épült, melynek maradványait napjainkban is láthatjuk Óbudán. Budapest még ma is működő, világhírű fürdői közül (Gellért, Rudas, Lukács, Rác stb.) néhány még a török hódoltság, a fürdőkultúra újabb fénykorának idején épült. A 19-20. század idején a balneológia, az orvostudományok és a mélyfúrás technika nagyfokú fejlődése jelentette a budapesti fürdők következő virágkorát, mely kisebb szünetek után napjainkban folytatódik.

Az 1930-as évek elején adták Budapestnek, mint a világ egyik legtöbb gyógyító termásvíz kútjával rendelkező városnak a "fürdőváros" címet. Manapság Budapestet inkább, mint a "fürdők és barlangok városát" emlegetik.

A főváros e két jellegzetessége nem független egymástól, minthogy egy összefüggő karsztrendszer speciális formációi, és közös eredetüket Budapest földtörténeti múltjában mintegy 200 millió évre visszatekintve lelhetjük fel. Ekkortájt keletkeztek a térség legrégebb üledékes kőzetei a Tethys tengerben, s a történet röviden egy szigetvilág szárazulattá válásáról szól.

II.3.3.1 BUDAPEST FÖLDTÖRTÉNETI MÚLTJA

Budapest mai területe a földtörténeti korok során többször kiemelkedett és többször a tenger szintje alá süllyedt. A tengerfenéken lerakódó üledékek sok-sok rétege a kiemelkedések során összetöredezett, és így a bennük kialakuló törések, törésrendszerek lehetővé tették, hogy a víz beszivároghasson és mozoghasson. Hosszú idő alatt a kőzetek hasadékaiban mozgó víz üregeket, egész hasadékrendszereket tágíthat nagyobb összefüggő járatokká. Ezt a folyamatot nevezzük karsztosodásnak. Pl. a karsztosodott dolomit és mészkő nagy mennyiségű vizet tárol összefüggő repedésekben, repedésrendszerekben.

A földtörténeti középkor elején, mintegy 200 millió évvel ezelőtt ezen a területen hullámzó tenger üledékeként rakódott le a mészkő és a dolomit több

ezer méter vastag rétegsora. Ezek a kőzetek alkotják a Budai-hegység fő tömegét és a felszínen látható képződmények jelentős részét. A triász következő időszakaiban ez a terület szárazföldként emelkedett ki a környező tengerből, mely során folyamatos pusztulásnak volt kitéve.

A földtörténet újkorának első szakaszában, az eocén időszakban a területet elöntötte a trópusi tenger, így a triász időszaki lepusztult mészkőre és dolomitra közvetlenül ráakódott a fiatalabb nummuliteszes mészkő. A két nagyon eltérő korú képződmény hasadékainak rendszere egymással összefüggő, egységes karsztvíztárolót alkot. Ugyanezen időszaki képződményekhez tartoznak még a jelentős vastagságú és elterjedésű márgarétegek, melyek eredendően vízzáróak, de a szerkezeti mozgások során kialakult repedésekben, oldással tágított járataiban éppúgy víz tárolódik, mint a mészkőben és a dolomitban. A márga főként agyagból áll és jelentős arányban tartalmaz meszet. A márga rétegeknek főként a budai oldalon van jelentőségük, ahol a törések és járatrendszerek mentén mintegy közvetítik a mélybeli karsztos kőzetek vizét a felszínre.

Az oligocén időszakban rakódott le az akkor itt hullámzó tengerből több rétegben a szürke agyag (ún. kiscelli agyag), mely vízzáró. Az agyagrétegek közötti homok- és homokkőrétegek vezetik a vizet, mivel ezek vékonyak, a bennük tárolt víz nem számottevő.

A mintegy másfél-két millió évvel ezelőtt kezdődött jégkorszak (pleisztocén) idején az Ős-Duna vastag kavicsleplet terített szét folyama mentén, melynek anyaga kisebb-nagyobb szemcsékből álló kavics, különböző szemcsenagyságú homokrétegek, melyekben agyagrétegek is találhatóak. Ezen rétegek szemcséiben, hézagaiban tárolt víz jellegét tekintve talajvíz. Egyes helyeken, ahol a kavicsrétegek közvetlenül települnek a meleg vizet felszínre vezető hasadékos kőzetekre, a kavicssteraszról is termális vizet lehet nyerni. Ez jellemző a Római-fürdő, a Lukács-fürdő környékén, valamint a Margitsziget északi végén.

Ha a főváros területét képzeletben elmentesszük és a felszínalatti rétegeket ábrázoljuk, ún. földtani szelvényen (Budapest környékének földtani és geotermikus szelvényei a Függelék 3. ábráján láthatók) akkor a következő képet láthatjuk.

A triász időszakban lerakódott mészkő és dolomit a Budai-hegységben több mint 400 méterrel emelkedik a Duna szintje fölé (C-C szelvény). Ugyanezek a kőzetek néhány kilométerrel távolabb, a pesti oldalon, 1000 m mélységben találhatóak a Duna szintje alatt (D-D szelvény). Tehát ugyanazok a kőzetek Budán hegységet építenek, Pesten pedig a medence aljzatát képezik, s rajtuk a fiatalabb üledékek rétegei tetemes vastagságban töltik ki magát a medencét.

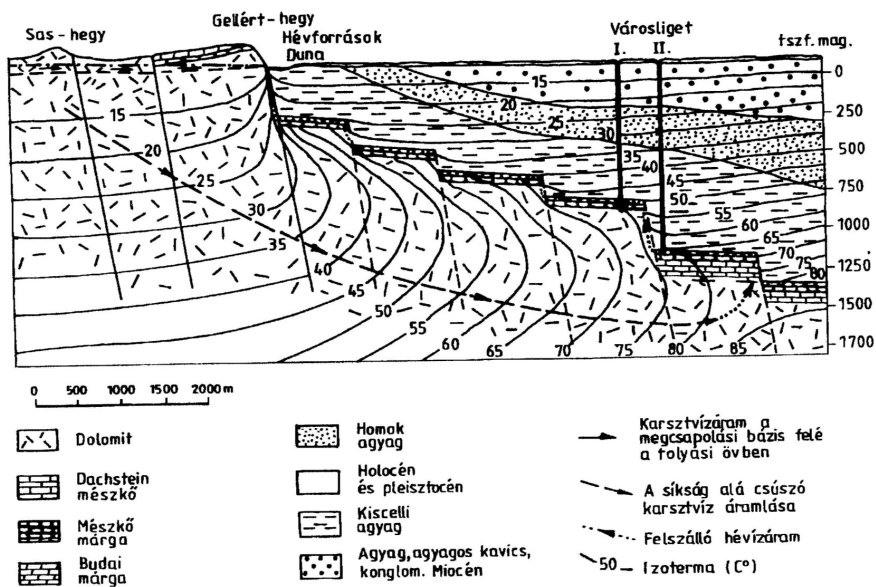
Az egyes víztartó kőzetek vize egymástól általában független. Az egyes vízfajták az oldott anyagok mennyiségében és minőségében eltérnek egymástól, így pl. vegyelemzéssel ki lehet mutatni, hogy melyik víztartó réteg vizével van dolgunk. Azonban az egymásra települő vagy szerkezeti síkok mentén egymással érintkező tárolókőzetek vize kisebb vagy nagyobb mértékben keveredhet, az érintkezés mértékének megfelelően. Ez történik a Római-fürdő, a Lukács-fürdő környékén, valamint a Margitsziget északi végén is, ahol a felszálló karsztvíz és

a talajvíz keveredik a kavicsban. A különböző típusú vizek a Duna-vonalában keverednek, főként a budai oldalon. Ez azzal magyarázható, hogy a hegység és a medence találkozásánál sok a két igen eltérő szerkezetű részt egymástól elválasztó törés, és a rétegek közvetlen rátelepüléssel is érintkeznek egymással a "rendestől" eltérő sorrendben.

II.3.3.2 A FŐVÁROS TERMÁL- ÉS GYÓGYVIZEI

A Budai-hegység szerves része a Dunántúli-középhegységnek, ezért hasonlóan viselkedik és beletartozik abba a nagy karsztvízrendszerbe, amely a hegységen belül, illetve, az azok közé ékelt medencékben az idők folyamán kialakult. A budapesti termális karsztvíz hatalmas területű, összefüggő rezervoárból kerül a felszínre. Különböző beszivárgási területekről származó, többféle pályán mozgó, ezért eltérő hőmérsékletű és minőségű vizekből tevődik össze [AI-76]. A keveredés mértékétől függően változik a felszínre lépő, illetve a kitermelt vizek hőmérséklete és minősége. Budapest térségében a langyos és termálvizek hőmérséklete 22-76 °C közötti.

A budapesti hévizek csapadékvíz beszivárgásából származnak. A beszivárgó esővíz és hólé, a törések, hasadékok mentén könnyen talál magának utat lefelé és a lejtésnek megfelelően oldalirányban mozog. Ennek a víznek egy része a lejtés mentén haladva eléri a felszínt és ott karsztforrásként felszínre lép. Másik része a vastag közettömeg mélyebb részei felé tart, ahol a növekvő hőmérsékletnek megfelelően felmelegszik. Valószínű, hogy a mélykarsztban a víz az Alföld medencéje alá is eljut, vagyis a budairól átmegy a pesti oldalra, ahol a vastag vízzáró üledékréteg alá kerül, így nincs számára fölfelé út. Az újabb beszivárgó hideg víz kényszeríti lassú, szivárgó útjára a lentebb egyre magasabb hőmérsékletű, ezért egyre kisebb fajsúlyú vizet. Valószínű, hogy a medence alatt "hurkot vet" a víz áramlása, elérvén a karsztos közettömeg alját. A fölfelé irányuló áramlás fölé kerül a lefelé haladó vízáramnak és a hévíz a hasadékokon át a kisebb nyomás irányába felszáll, hogy évszázadok vagy évezredek múlva a felszínre bukkanjon (II-3. ábra). Az utánpótlás mértékét a kitermeléssel túllépni sohasem szabad, nehogy elapadjanak a források [Ch-80].

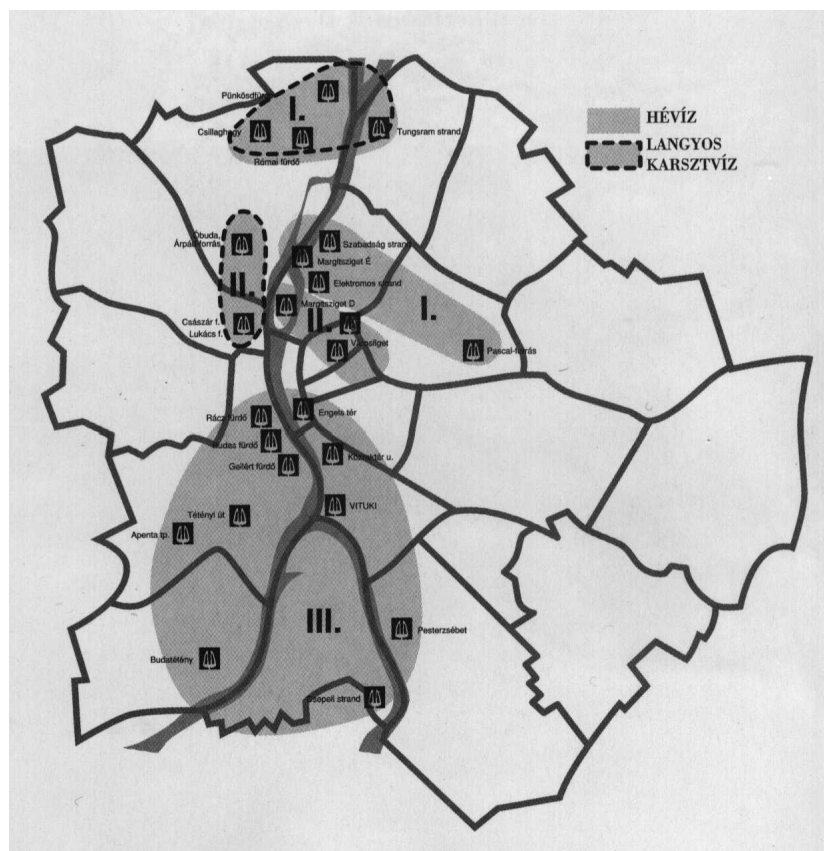


II-3. ábra. A karsztvízáramlás elvi sémája Budapesten [Ha-93]

A budapesti hévizek területi elhelyezkedés, a vízadó réteg, a vízben oldott ásványi anyagok mennyisége és a víz hőmérséklete alapján csoportosíthatók (II-4. ábra). Balogh Éva a források és kutak öt csoportját határozta meg [BF-96, Me-98]:

- I.1) *Budapest északi csoport*, melynek vizei egyszerű, langyos karsztvizek. Ide tartozik a Pünkösdfürdő, Római-fürdő, Csillaghegy forrásai és kútjai, a Tungram strand kútja és az óbudai Árpád-forrás.
- I.2) *Margitsziget északi csoport*, ezek a vizek termális karsztvizek. A Margitsziget északi környezetének kútjai, a Dagály strand kútja, Elektromos Sportegyesület kútja és az előbbieknél magasabb hőmérsékletű de jellege alapján idetartozó Pascal-kút.
- II.3) *Mélykarszt csoport*, ezek a vizek termális mélykarsztvizek. Margitsziget II. kút (Magda-kút) továbbá a városligeti Széchenyi I. és II. kút.
- II.4) *József-hegyi csoport*, melynek vizei széles hőmérsékleti tartományban és eltérő kémiai jelleggel fordulnak elő, mely a langyos és meleg komponens keveredésének az eredménye. Ide tartoznak a József-hegy lábánál fakadó langyos források, valamint a hegy lába és a Duna-part között fúrt kutak. (Lukács-fürdő forrásai, kútjai)
- III.5) *Gellért-hegyi és budapesti déli csoport*, ezek a vizek termális karsztvizek, melyek hőmérséklete csak szűk határok között változik. Ide tartoznak a Gellért-hegy környéki források, a Rudas-, a Rác- és a Gellért-fürdő forrásai és kútjai, a Csepeli és a Pesterzsébeti termálkút, a Közraktár utcai kút, a

Tétényi úti kórház és a VITUKI kútja, az Apenta telepi kút, a Budatétényi és az Erzsébet téri megfigyelőkutak.



II-4. ábra. Budapesti források és kutak öt csoportja [BF-96]

Az egyes csoportok között adódó különbségek arra vezethetők vissza, hogy a különböző helyeken más az áramlási sebesség, más lehet a mélyben való tartózkodás időtartama, és némileg különbözhetnek a víz útja során érintett kőzetek is. Egyes helyeken pedig a termális víz keveredik az útjába eső hideg karszt- és talajvízzel a felszín közelében.

A budapesti langyos és meleg források vize, vegyi jelleg alapján, a hidrogén-karbonátos vizek csoportjába tartozik. A termális karsztvizek és a mély karsztvizek a hidrogén-karbonátos hévizek önálló, az országban egyedülálló két alcsoportját alkotják: a hidrogén-karbonátos szulfidos és a hidrogén-karbonátos kloridos-szulfidos vizek csoportját.

II.3.4 Budapesti hévizek radioaktivitása

Figyelemre méltó tudománytörténeti esemény, hogy a radioaktivitás 1896-ban történt felfedezése után, Weszelszky Gyula 1912-ben budapesti fürdők hévizeinek vizsgálatairól számol be, mely méréseknek az volt a célja, hogy "vajjon nem tartalmaznak-e azok valamilyen radioactiv testet". Vizsgálatait 1909-ben kezdte el Elster és Geitel által konstruált emanométerrel. Azonban ezzel a készülékkel kapott adatok nem voltak eléggé reprodukálhatók, ezért azt átalakította, mely által kiküszöbölte a radon-vesztéséből adódó hibákat. A "tökéletesített" módszer alapja az volt, hogy a mérendő vizet zárt edénybe helyezte és a víz feletti, radont tartalmazó levegőt egy légritkított hengerbe szivattyúzta át. A mérőműszer egy egyszerű elektrométer volt, melynek az ionizáció által okozott kitérésváltozását mikroszkóppal figyelte meg.

Az Országos "Frederic Joliot-Curie" Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Intézet munkatársai az 1990-es évek elején kezdték el budapesti gyógyfürdők radioaktivitásának vizsgálatát [Sz-94]. Szerbin Pével egy Magyar-Szlovén TÉT pályázat keretében, melyben az MTA Atomki Radon Csoportja is résztvevő partnerként szerepelt, a Gellért-hegyi fürdők és barlangok vizének, valamint légterének radon aktivitáskoncentrációját vizsgálta. A kutatások elsődleges célja az volt, hogy megállapítsák mekkora járulékos sugárterhelés éri a gyógyfürdőkben dolgozó és gyógyulni vágyó személyeket. A mérések szerint a Hungária, a Juventusz és az Attila források vizének, melyet a Rudas-fürdő ivócsarnokában gyógyvízként árusítanak, radon- és rádiumtartalma a legmagasabb a hazai vizek között (lásd II-6. táblázat).

Az ELTE Atomfizikai Tanszékén, Kasztovszky Zsolt is vizsgálta a Rudas gyógyfürdő forrásainak radontartalmát, amelynek során kapott adatokat szintén a II-6. táblázat tartalmazza (13. oldal).

II.4 HARGITA-MEGYEI ÁSVÁNYVIZEK

Földrajzi fekvésénél fogva Hargita-megye földtani felépítése szerkezetileg igen sokféle változatot mutat: mezozoikus kristályos kőzetek, kárpáti homokkő, vulkanikus és üledékes kőzetekből álló rétegek váltakoznak a megyében. Ez a földtani változatosság kedvezően hat az ásványvizek vegyi szempontból széles skálájának kialakulására (sós, kénes, karbonátos, stb.). A változatossághoz hozzáadódik a szénsavas jelleg, mivel a megye nagy része a neovulkanikus vonulat (Kelemen-havasok, Hargita-hegyvonulat) utóvulkanikus gázkörzetének hatása alatt áll. Ennek következtében a megye szinte minden településének határában található legalább egy szénsavas ásványvíz (borvíz) és száraz gázfeltörés (mofetta).

II.4.1 A Hargita-megyei ásványvíz hasznosítás rövid története

Erdélyben az ásványvizek felhasználása széleskörben és különböző módon történik. A helyi lakosok, maguk gondoskodva a szállításról, a mindennapi élet szinte minden területén használják a borvizeket (mosás, főzés, ivóvíz). A borvizek helyi értékesítése során, agyagedényekben vagy üvegkorsókban hordják ki a helybeli vagy a környékbeli előfizetők részére. Egyes források vizét töltőállomásokon palackozzák, melyek kereskedelmi forgalomba kerülnek mind belföldön, mind külföldön. Az ásványvizek fürdőgyógyászati felhasználása is nagy múltra tekint vissza.

A Hargita-megyei ásványvizek és az ezekre épült fürdőhelyek hasznosításának történetében a következő időszakok különíthetők el [Na-74]:

A *népies empirizmus* időszakában, mely a legrégebbi időktől 1850-ig tartott, az ásványvizeket főként ivóvízként használták a környék lakói, mely során tapasztalták azoknak a szervezetre gyakorolt jótékony hatását. Ezzel párhuzamosan, még a kiépített közfürdők megjelenése előtt, egyes helyeken gyógyhatásokat észleltek külső használat révén is. Például az Erdélyben élő pásztorok a borvíz források vizét egy gödörbe gyűjtötték, hogy megmártsák benne fájó testrészeiket, mert azt tapasztalták, hogy bántalmaik egy bizonyos idő után elmúltak. A megye fürdőéletéről írásos bizonyítékok a 17. századból származnak, bár a Borszék területén talált római pénzérmék alapján arra következtetnek, hogy ásványvizeit már a rómaiak is ismerték. A borszéki ásványvízből, az 1806-ban megkezdett palackozása során már 3 millió litert palackoztak évente, melyeket szekerekkel szállítottak Erdélybe, Moldovába, Magyarországra és Bécsbe is. Érdekes, hogy a palackozást csak napsütéses napokon végezték, mivel ilyenkor maximális a légnyomás, tehát a CO₂-tartalom is a legnagyobb volt. A 19. század elején elkezdik a már korábban vizsgált borvizek vegyi elemzésének ismétlését, valamint kiterjesztik az elemzéseket addig nem vizsgált borvizekre is. Ezek közül kiemelkedőek voltak Than Károly és Hankó Vilmos által 1873-ban és 1890-ben végzett elemzések, melyek általános képet nyújtottak a megye jelentősebb borvízforrásainak vegyi összetételéről. Ebben az időszakban kezdik el a források befoglalását, valamint kezdetleges gyógyberendezések létesítését. Megjelennek az első fürdőorvosok is.

1850-től 1880-ig tartott a "*családiás*" *fürdőélet* időszaka, mely orvosi szempontból szintén empirikusnak mondható. A kialakított fürdőhelyek körül faházakat, villákat építenek, megindul a turizmus fellendülése, valamint megjelenik a kereskedelmi szellem, ami abban tükröződik, hogy a fürdőhelyeket egyre gyakrabban bérbe adják. 1865-ben az Erdélyi Gubernium utasította a megyék kormányzóit, hogy minden eszközzel támogassák a fürdők fejlesztését. A korszak családiasságára jellemző, hogy kisebb települések fürdőhelyein nem adtak ágyeműt a kiadott szobákhoz, mindenki "teljes háztartással" ment nyaralni.

1880 után elkezdődött a *fürdőélet hanyatlási időszaka*, mely 1914-ig, az első világháború kitöréséig tartott. Jellemző ekkora, hogy a fürdőhelyek bérlői

fejlesztések és beruházások nélkül, minél több hasznot próbálnak húzni a üzemeltetés révén. További probléma, hogy az erdélyi fürdők a gyorsan fejlődő stájerországi, tiroli, balaton környéki, moldovai, stb fürdőhelyek egyre erősebb versenyével találták magukat szemben. Egyes fürdőhelyek mégis nemzetközi hírnévhez jutottak, annak ellenére, hogy a kor követelményeinek nem feleltek meg, azonban az általános hanyatlást az sem állította meg, hogy a nagyobb fürdőhelyeknek ebben az időszakban már saját orvosai voltak.

A két világháború közötti időszak (1914-1944) a *fürdőélet fellendülését* jelentette. Igaz, hogy ekkor az ingatlanok értéke leesett, azonban az osztrák-magyar valuta elértéktelenedése lehetővé tette, hogy a fürdők megszabaduljanak a korábban felhalmozott adóságaitól. A fürdőhelyek jövedelmezőbbekké váltak azáltal, hogy feladták gyógyfürdő jellegüket és inkább szórakozóhelyekké alakultak át.

Az 1945-től napjainkig tartó időszakban fő szempont volt a fürdőhelyek gyógykezelő jellegének visszaállítása, befektetések révén orvos-egészségügyi szolgáltatások, fizioterápiás berendezések, szállodák létesítése, melyek megfelelnek a kor követelményeinek és biztosítják a vendégek pihenését.

II.4.2 Hargita megye ásványvíz kincsei

Hargita-megye ásványvíz forrásai, földrajzi elhelyezkedésüket tekintve, víztároló medencék, hegytömbök által meghatározott, természetes övezetekben csoportosulnak. A megye ásványvizeit földrajzi fekvés szerint hét fő forráscsoportba sorolhatjuk [Ar-74]. Az általunk vizsgált ásványvizek helység neveit dőlt betűvel emeljük ki. Hargita-megye domborzati térképe a Függelék 4. ábráján látható.

I. Északi csoport, melyet a tölgyesi, bélbori, toplicai és *borszéki*- források alkotnak. A vízáadó réteget tekintve ezek az ásványvizek a kristályos övezetek repedéseiben és üregeiben összegyűlt vízkészletek, amelyek rendszerint szénsavasak, bikarbonát, kalcium és magnézium tartalmúak, alacsonyabb összes ásványianyag-tartalommal. A Borszéki-medence földtani felépítésében kristályos palák, kristályos mészkövek és andezites agglomerátok vesznek részt. A kristályos palák széles dolomitos, kristályos mészkő sávokat foglalnak magukba, amelyek magukban rejtik Borszék földalatti vízkészletét.

II. Gyergyói-medence ásványvíz csoportja a Gyergyói-havasok (keleten), a Görgényi-havasok (nyugaton) és a Kelemen-havasok (észak-nyugat) fiatal vonulatai által határolt medencében helyezkedik el. A medence földtani szempontból egy utótektonikus besüllyedés, amelyet fiatal pliocén és negyedkori lerakódások töltöttek föl. Az ülepedés igen változatos viszonyairól tanúskodik a kavicsok, homokok és iszapok váltakozása. A Gyergyói-medencében, a Maros vonalát követő természetes CO₂ feltörési vonalon gyakoriak az ásványvíz források, ami azzal magyarázható, hogy a föld mélyéről felszálló szén-dioxid oldódik a talajvízrétegben és azt ásványvízzé alakítja.

III. Felcsíki-medence ásványvíz csoportja, mely körzetben a negyedkori lerakódásokban végzett fúrások majdnem kivétel nélkül szénsavas, vasas, mérsékelt szén-dioxid tartalmú ásványvizeket tártak fel. A medence nyugati lejtőin lévő természetes források, andezitekből és vulkanikus agglomerátumokból származnak.

IV. Alcsíki-medence forráscsoportja, amelyet a Csíkszentkirály-Verebes-Tusnádfalu, valamint a Hargita-hegység keleti lejtőin, annak andezit közeteinek repedéseiben összegyűlt vizek (pl. *Hargitafürdő*) és a Bodoki-hegység nyugati peremén lévő források alkotnak. A medencét feltöltő üledék részben a vulkáni övezetből származik, mely nyugat felől szegélyezi a medencét, részben pedig az attól keletre található flis rétegekből. A homokfélék, a kavicsok, a homokos-agyagos rétegbe ágyazott görgetegek, flis törmelékek váltakoznak a rétegsorban.

Tehát a fent felsorolt Gyergyói-, Felcsíki- és Alcsíki-medencék ásványvíz forrásai negyedkori és pliocén áteresztő rétegeiben összegyűlt vizek, melyek talajvíz és mélységi vízréteget képeznek. Az átalunk vizsgált vizek közül ide tartoznak a *gyergyóremetei*, a *csíkdánfalvi*, az egyes *madarasi* források, a *madicsafürdői*, a *csíksomlyói*, a *csíkszentkirályi*, a *csatószei* és a *tusnádfalvi*, stb. források.

V. Keleti forráscsoport, mely magába foglalja az összes kászoni és jakabfalvi előfordulásokat. Ezen a területen feltörő források vizére jellemző, hogy a homokkő képződmények félig áteresztő szintjein, a rétegfelületeken és a tektonikus repedésekben összegyűlt ásványvizek. Ezek bikarbonátos-meszes, sós, szénsavas, néha kénes vizek. Nevezetesen a Kászon-patak felső medencéje, a Bodoki-hegység nyugati oldala, és a Csíkbánkfalva-Bálványos között feltörő borvizek. Az általunk vizsgált vizek közül egyik sem található ezen a területen.

*VI. Nyugati forráscsoport*hoz a Hargita-hegységtől nyugatra, a vulkáni hegytömb lejtőjén, valamint az Erdélyi-medencében feltörő ásványvizek tartoznak. Az Erdélyi-medence területén található forrásokra jellemző (Parajd, Korond, Székelyudvarhely, Homoródalmás, stb.), hogy miocén üledékek vízáteresztő szintjén összegyűlt vizek, míg a Hargita-hegység nyugati oldalán lévő Kápolnásfalu, *Homoródfürdő*, *Szentegyháza*, *Kiruj*, *Szeltersz*, *Szejke*, *Árcsó*, *Kovard* és *Lövete* helységeken található feltörések a Hargita-hegység vulkanogén, üledékes övezetének piroklasztikus breccsáiban, agglomerátumaiban és andezit-homokjaiban összegyűlt vizek.

*VII. Déli forráscsoport*hoz (*Tusnádfürdői övezet*) tartoznak a Szent-Anna hegytömb nyugati oldalán található források. Az övezet ásványvíz készlete andezit-lávák repedéseiben, andezites agglomerátumokban vagy piroklasztikus eredetű kavics- vagy homokrétegekben található.

II.4.3 A megye ásványvízfeltörési vonalai

A megye szénsavas ásványvíz feltörései és száraz gázömlései négy vonal mentén csoportosíthatók.

I. feltörési vonal a kászoni-jakabfalvi források (*Keleti forrás csoport*) sorozatát foglalja magába, észak-déli elrendezésben.

II. feltörési vonal magába foglalja a Bodoki- és Csíki-havasok (kréta kori flis rétegeiből) nyugati oldalán lévő, valamint a Hagymási és Gyergyói-havasokból (kristályos mezozóikus övezetéből) származó ásványvizeket és gázfeltöréseket. E törésvonal mentén törnek felszínre az *Északi forrás csoport* ásványvizei is.

III. feltörési vonal magába foglalja az Olt és a Maros folyása mentén lévő, hegyközi *Alcsíki-, Felcsíki-, Gyergyói-medencék* forrásainak csoportját, a tusnádfürdői, valamint a Szent-Anna hegytömbjének a nyugati oldalán fakadó forrásokat (*Déli forrás csoport*), a vulkanikus Hargita-hegység keleti oldalán fakadó forrásokat is. Az Alcsíki-medence forrásai két észak-kelet irányú törésvonal mentén fakadnak, melyek közül az egyik az Olt völgye mentén, míg a másik a vulkanikus Hargita-hegység keleti oldalán fut végig. A Felcsíki-medence forrásai Csíkszereda, Csíksomlyó körzetében és az Olt árterületén, valamint Hargitafürdőn fakadnak. Ide tartoznak a csíkmadarasi fúrott kutak is.

IV. feltörési vonal, mely erősen fejlett Kovászna-megye nyugati felében és átnyúlik Hargita-megye délnyugati részére és felöleli a Hargita-hegység nyugati oldalán fakadó forrásokat (*Nyugati forrás csoport*).

A leírtak alapján látható, hogy a Hargita-megyei ásványvízforrások az egész megye területét átfogó törésvonalak mentén, víztároló medencék és hegytömbök által meghatározott természetes övezetekbe csoportosulnak.

II.4.4 Hargita-megyei ásványvizek radioaktivitása

A megye területén található ásványvizek radioaktivitását célzó kutatások már 1926-tól folytatók, azonban ezek még a források radontartalmának meghatározására szorítkoztak. A különböző módszerekkel kapott eredmények nem minden esetben voltak összhangban egymással. Az eltérések magyarázhatóak azzal, hogy egyes esetekben a radon méréseket nem a helyszínen végezték, hanem laboratóriumban, több nappal a mintavétel után, de magyarázatul szolgálhat az alkalmazott radonmérési-technikák különböző mértékű radonvesztése is.

1942 után Szabó Árpád végzett rendszeres radioaktivitás vizsgálatokat a megye területén, melynek során az ásványvizek radon-, és rádiumtartalmát is vizsgálta [Sz-74]. A radon meghatározására többféle módszert is alkalmazott. Az egyik módszer szerint ZnS kristályokkal bevont szcintillációs kamrát használt elektronsokszorozóval és impulzusszámlálóval. A készülék hitelesítését rádium etalon oldat segítségével végezte. A rádium meghatározása közvetett módon történt, mégpedig a készülékben felhalmozódó radon meghatározása révén. A vízmintából a rádiumot a báriummal együtt szulfát alakban lecsapta. A szulfátokat oldatba vitte alkáli karbonátokkal való összeolvasztás által. A felépülő radont 1 hónap, a szekuláris egyensúly kialakulása után mérte. Néhány általa kapott adat látható a II-8. táblázatban. Az adatokat a hivatkozási

hűség kedvéért az eredeti egységekben adjuk meg, feltüntetve mellettük az adatokat Bq/l, mBq/l egységben is.

II-8. táblázat. Hargita-megyei ásványvizek radon- és rádiumtartalma [Sz-74]

Helység és forrás neve	²²² Rn (Mache EL)	²²² Rn (Bq/l)	²²⁶ Ra (10 ⁻¹² g/l)	²²⁶ Ra (mBq/l)
Borszék fürdő: Petőfi	1,10	14,85	0,90	33,3
Kossuth	1,70	22,95	1,80	66,6
Pierre Curie	18,10	244,34	8,20	303,4
Csíkdánfalva: Dugás fürdő	0,85	11,48	-	-
Tusnádfürdő: Ilona fürdő	3,30	44,55	-	-
Hargitafürdő: Vallató forrás	0,26	3,51	-	-

$$10^{-12} \text{ gRa/l} = 1 \text{ pCi/l} = 37 \text{ mBq/l}$$

$$1 \text{ Mache EL} = 364 \text{ pCi/l} = 13,5 \text{ Bq/l}$$

A Szabó Árpád által vizsgált vizek nagy része mérsékelt radioaktivitást mutat, a Borszéken és Tusnádfürdőn fakadók kivételével. Ez utóbbiak emelkedett radioaktivitását eredetükkel magyarázta. A borszéki és tusnádfürdői források kristályos palákból vagy fillit tartalmú kőzetekből erednek. A fillit zöldesszürke finoman levelezett kristályos pala, amely túlnyomórészt kvarcból és szericitből áll.

III ALKALMAZOTT MÉRÉSI MÓDSZEREK ÉS MÓDSZERFEJLESZTÉS

A ^{226}Ra alfa-részecske kibocsátásával ^{222}Rn -ná bomlik, mely szintén alfa-bomló, de ezen elem további rövid felezési idejű bomlástermékei között már béta-bomló radioizotópok is találhatóak. A radioaktív elemek bomlásuk során nemcsak α - és β -részecskéket, hanem γ -fotonokat is kibocsátanak. A rádium, a radon és bomlástermékeik alfa-, béta- és gamma-sugárzás detektálása útján egyaránt azonosíthatók.

A vízminták radon- és rádiumtartalmának meghatározására elsősorban maratottonyom-detektoros radonmonitoros módszert használtam. Ez a módszer a kémiai feltárás nélküli vízmintában keletkező radon és bomlástermékei alfa-sugárzásának maratottonyom-detektoros mérésén alapszik. A következőkben részletesen bemutatom a módszert és a módszerfejlesztés során elért eredményeimet. A módszer alkalmazása során kapott mérési eredményeket a IV. fejezetben mutatom be.

A ^{226}Ra közvetlen bomlásából származó ^{222}Rn bomlástermékei közül, a β -bomló ^{214}Pb és a ^{214}Bi gamma-vonalai megfelelő energiával és hozammal rendelkeznek, emiatt nagy hatásfokkal detektálhatók. Ezen radioizotópok monoenergiás gamma-vonalainak felhasználásával egyes minták ^{226}Ra aktivitáskoncentrációját gamma-spektrometriás módszerrel is meghatároztuk.

Vízminták radontartalmának meghatározása, a radon szeparálása után lehetséges Lucas-kamrába történő gázaramoltatással. Ugyanezzel a módszerrel vízminták rádiumtartalma is meghatározható laboratóriumi keretek között, a rádium radiokémiai elválasztása után.

E fejezet végén röviden ismertetem az utóbb említett, együttműködő partnereink által alkalmazott gamma-spektrometriás és Lucas-kamrás módszereket is.

III.1 HÉVIZEK ALFA-RADIOAKTIVITÁSÁNAK VIZSGÁLATA MARATOTTNYOM-DETEKTORRAL

III.1.1 Maratottonyom-detektorok

Sok olyan szilárd anyag ismert (pl. műanyag, csillám), melyben egyszerű eljárással töltött részecskéket detektálhatunk. Az elektromosan szigetelő szilárd anyag és az erősen ionizáló atomi részecskék kölcsönhatása következtében, a besugárzott detektorban fékeződő töltött részecskék pályája mentén, 5-10 nm átmérőjű *látens nyomok* (primer nyom, sugárrombolt csatorna) keletkeznek, melyek megfelelő kémiai maratás hatására mikroszkóppal látható méretűvé (5-10

μm átmérőjű üregekké) nagyíthatók. Ezen detektorokat maratottonyom-detektoroknak (régebben szilárdtest nyomdetektoroknak) nevezzük.

Az egyedi atomi részecskék által létrehozott lokális sugárrombolás elektronmikroszkóp alatti észlelhetőségét D.A. Young fedezte fel 1958-ban. Jelentős eredményeket ért el ezen a területen, de munkái észrevétlenek maradtak. Young-tól függetlenül, 1959-ban E.C.H. Silk és R.S. Barnes hasadványok látens nyomait figyelik meg vékonyan hasított muszkovit csillámokban, transzmissziós elektronmikroszkóppal. Néhány évvel később (1962-63) R.L. Fleischer, R.B. Price és R.M. Walker felfedezi, hogy a részecske pályája mentén a sugárrombolás következtében kémiai reakcióképesebbek mutató anyag maratás során eltávozik, így egy üreges csatorna (maratási nyom) jön létre, amely 10-100 μm méretű és optikai mikroszkóppal vizsgálható. Erre a folyamatra mondható, hogy kémiai maratással a primer nyomok "előhívhatók" és "fixálhatók". Ásványokra, üvegekre és műanyagokra alkalmazva a kémiai maratást és az optikai mikroszkóppal történő kiértékelést, ők indították hódító útjára a nyomdetektoros technikát, amelyet az Apollo program inspirált.

A debreceni fizikusok (Csikai Gyula, Somogyi György, Várnagy Mihály) viszonylag hamar (1966-67) bekapcsolódtak a kutatásokba és világviszonylatban is jelentős eredményeket értek el. Az ATOMKI Nyomdetektor Csoportjának néhai vezetője, Somogyi György 1987-ig tartó munkássága főként erre a technikára épült. Jelentős eredményeket ért el az újszerű technika fejlesztése és annak csaknem minden alkalmazási területén. Pl. már 1973-ban felismerte, hogy korreláció van a műanyag fóliákban, mint nyomdetektorokban regisztrált alfa-részecskék energiája és a maratott nyom átmérője között [So73].

A maratottonyom-detektorok felfedezése óta eltelt közel fél évszázad alatt több ezer közlemény jelent meg ezen technika fejlesztéséről és különböző területeken való széleskörű alkalmazásairól. Több összefoglaló jellegű könyv is megjelent, melyek közül ma is nagy jelentőségű R.L. Fleischer, P.B. Price és R.M. Walker 1975-ben megjelent *Nuclear Tracks in Solids* [Fl-75] című könyve, valamint A.S. Durrani és K.R. Bull 1987-ben megjelent *Solid State Nuclear Track Detection* [Du-87] című könyve.

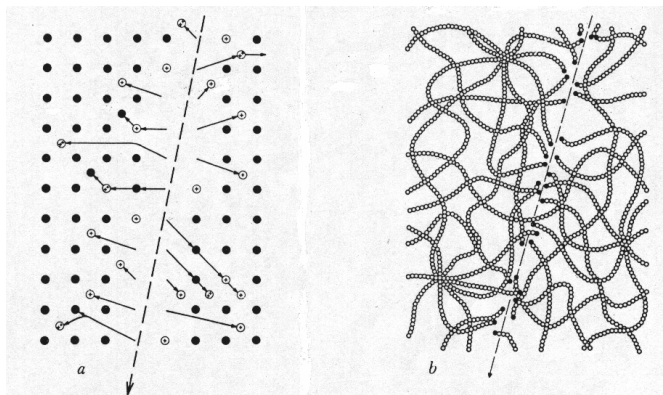
III.1.1.1 A NYOMKIALAKULÁS ELMÉLETI MODELLJEI

Töltött részecskék elektromosan szigetelő szilárd anyagon történő áthaladás során energiájuk döntő részét az anyag atomjainak ionizálása és gerjesztése következtében veszítik el és így pl. a nyomdetektor anyag szerkezetében lokális, mikroszkopikus változásokat hoznak létre. Az anyagok eltérő fizikai és kémiai tulajdonságai miatt a nyomkialakulás mechanizmusára nincs egységes elmélet.

Ásványokra és üvegekre legáltalánosabban elfogadott az *ionrobbanásos elmélet (ion explosion spike model)*. Eszerint a töltött részecske pályája mentén ionizálja a szilárd anyag atomjait. Az így keletkező elektrosztatikusan instabil ioncsatorna szétrobban, melynek következtében nagyszámú intersticiális hibahely és vakancia marad hátra. Ennek feltétele azonban, hogy az erősen

lokalizált tértöltés ne csökkenjen le gyorsan és hogy a fellépő elektrosztatikus erők elég nagyok legyenek az atomok elmozdításához. A fentiek alapján érthető miért nem keletkeznek nyomok fémekben. Ezt a modellt szemlélteti a III-1a. ábra.

Míg az ásványok (csillám), üvegek csak a nehéz töltött részeket (hasadási termékek, gyorsítókból nyerhető nagy energiájú nehéz ionok, pl. 600 MeV-es ^{56}Fe) tudják detektálni, addig a legérzékenyebb nyomdetektor anyagok, a polimerszerkezetű műanyagok, a könnyű atomi részecskéket, így az alfa-sugárzást is. Ezekben az anyagokban a nyomképződés magyarázata a következő. A beeső töltött részecske pályája mentén a hosszú polimer láncokban a kémiai kötések felszakadnak és nagyobb reakcióképességű szabad gyökök keletkeznek. Ezen szabad végek oxidálódnak, s a megrövidült láncok, lánctöredékek oldódási sebessége nagyobb, mint a károsodást nem szenvedett polimeré. Ezt a modellt szemlélteti a III-1b. ábra.

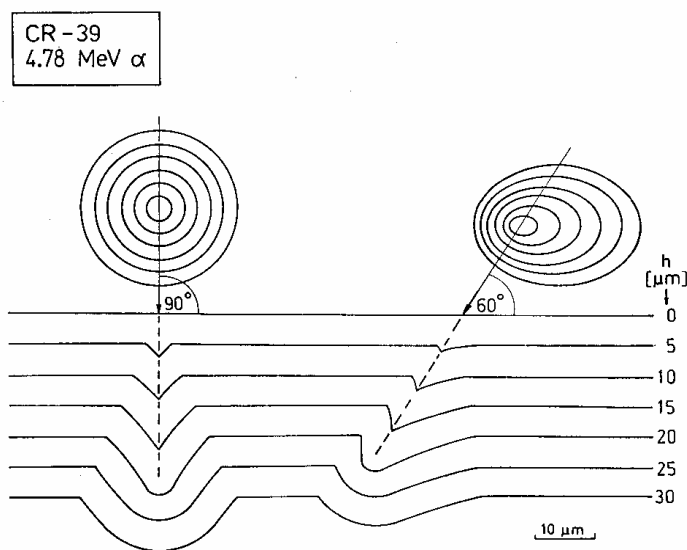


III-1. ábra. (a) ionrobbanásos modell kristályokban, (b) nyomkeletkezési modell műanyagokban [Fl-75]

III.1.1.2 NYOMFELTÁRÁS ÉS A NYOMÜREG KIALAKULÁSA

Nyomfeltáráson a pályamenti sugárrombolt tartomány olyan megváltoztatását értjük, amely a primer, látens nyomot felerősíti és stabilizálja, így jól megfigyelhető képződménnyé, szekunder nyommá alakítja. Erre többféle eljárás is létezik (pl. nyomdekorációs technika, elektrokémiai maratás), de a gyakorlati alkalmazások több mint 90%-ában a kémiai maratás bizonyult a legcélravezetőbbnek. Az eljárás során elsősorban a sugárrombolt tartománnyal lép reakcióba a kémiai reagens, s az így gyorsan kialakuló nyommenti csatorna méreteit aztán az alapanyag kisebb maratási sebességével folyamatosan növeli. A besugárzás alkalmával kialakult látens nyomot a kémiai maratás következtében 5-10 μm átmérőjű üreggé növeljük. A nyomüreg kialakulásának feltétele, hogy a primer sugárrombolt tartomány mentén a maratási sebesség (v_T) nagyobb legyen, mint a detektoranyag maratási sebessége (v_B). A szilárdtest nyomdetektorok

felületi detektorok, ami azt jelenti, hogy – bár primer nyomok az egész detektor térfogatában jelen lehetnek pl. neutronokkal történt besugárzás esetén – kimaratható nyomüregeket csak a detektor felületét átszelő részecskepályák esetében kapunk, mert a maratószer csak itt tud reakcióba lépni a sugárrombolt zónákkal. A maratás még a maratószerrel közvetlenül érintkező felületeket átszelő nyomoknál sem egyformán hatásos, ami azt mutatja – a kísérleti eredményekkel egyezően – hogy a szilárdtest nyomdetektorok küszöbdetektorok. Ez azt jelenti, hogy kimaratható nyom csak egy adott küszöbértéknél nagyobb sugárrombolás létrejötte esetén kapható. A nyomüreg kialakulása a részecskepálya és a detektorfelület által bezárt szögtől is függ. Ha a részecske az ún. regisztrációs határszögnél kisebb szög alatt lép be a detektor felületére, kimaratható nyomüreg nem alakul ki. A maratási üregek sok információt hordoznak, pl. meghatározható a nyom átmérője és a nyom hossza is.



III-2. ábra. A kémiai maratás során kialakuló nyomüreg metszeti és felülnézeti képe eltérő beesési szögek esetén. A szimuláció a ^{226}Ra 4,78 MeV-es alfa-részekre történt [So90]

Az optimális maratási körülmények előrejelzésére egyenlőre nincs általánosan alkalmazható szabály. A különböző anyagú detektorok maratószereinek megválasztása rendszerint empirikus úton történik. Ásványokra és üvegekre általában fluorsav, míg műanyagokra NaOH vagy KOH vizes vagy alkoholos oldatát alkalmazzák maratószerként.

A kémiai maratás során kialakuló nyomüreg méretét számos tényező befolyásolja. Így pl. a detektoranyag tulajdonságai, a maratószer összetétele, koncentrációja, hőmérséklete, a hívási idő hossza, a detektálandó részecske

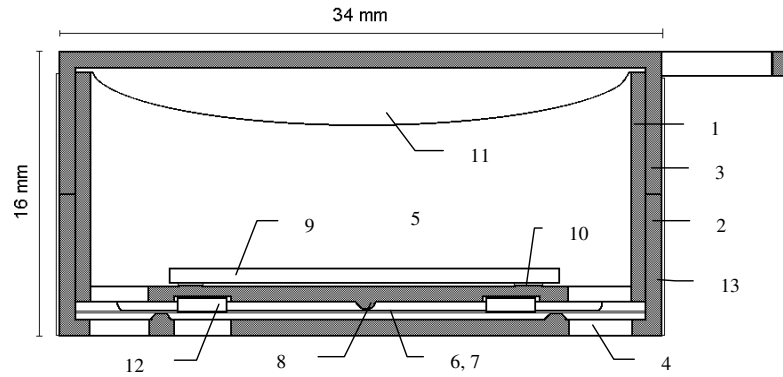
jellemzői (A, Z, E) és belépési iránya (ha a belépési szög kisebb, mint 90° , akkor az üreg ferdekúp és a bemeneti nyílása ellipszis alakú, lásd III-2. ábra).

Az optimális maratási időt a részecskék fajtája, energiája és fluxusa együttesen határozza meg. A maratási idő növelésével a nyomok átmérője is növekszik, így a nyomok egymásba érhetnek, ami nehezíti a számlálásukat.

A nyomdetektorok szélsőséges környezeti paraméterek között is alkalmazhatók (pl. nagy páratartalom, kozmikus háttérsugárzás, fény, (-40) - $(+80)^\circ\text{C}$ közötti hőmérsékletingadozás). A látens nyomok hosszú időn keresztül raktározódnak az expozíció és a maratás között, az előhívott detektor pedig, mint eredménytároló voltaképpen örökéletű. A szerves polimerekből készült nyomdetektorok különösen alkalmasak a környezeti α -sugárzással járó jelenségek vizsgálatára, mivel más, az α -részecskénél kevésbé ionizáló β -, γ - és fénysugárzással szemben gyakorlatilag érzéketlenek. A nyomdetektoros módszer egyszerűsége, olcsósága valamint az imént említett tulajdonságai miatt igen népszerűvé vált a felfedezését követő évtizedekben, különösen a környezeti radon vizsgálatának területén.

III.1.1.3 RADAMON, LÉGTÉRI RADONMONITOR

Barlangok, lakások és munkahelyek légterében kialakuló radonkoncentráció integráló mérésére a maratottonyom-detektoros módszer előnyös és ezért nagyon elterjedt. Az 1989-90-es években az MTA Atommagkutató Intézetének Radon Csoportja, OMFB kutatási szerződés keretében, kifejlesztett egy ilyen mérésekre alkalmas, kis méretű radonmonitort, ami a Radamon márkanévet kapta, s amelynek legutóbbi részletes bemutatása a [Cs-01]-ben található. A Radamon egy 35 mm külső átmérőjű és 18 mm magasságú üreges plastik henger, amely egy $1\text{-}2\text{ cm}^2$ területű CR-39 (allil-diglikol-karbonát) típusú, jelenleg legérzékenyebbnek ismert polimer nyomdetektort tartalmaz. Egy detektor annál érzékenyebb, minél kisebb ionizáló képességű részecskéket képes detektálni. A nyomdetektor érzékenységén, a részecskenyom pályája menti v_T maratási sebességnek a roncsolásmentes detektoranyag adott hőmérsékleten történő v_B maratási sebességéhez viszonyított, $S=v_T/v_B$ hányadosát értjük. A méréseinkhez használt TASTRAK márkanévé CR-39 lemezeket a bristoli egyetemen gyártják [TASL]. A Radamon részei és felépítése a III.-3. ábrán látható [Cs-90] nyomán.



III-3. ábra. A Radamon részei és felépítése [Cs-90]

A (1) doziméter ház, az (2) alaplapp és a (3) fedőlap magas fényű, fekete színű műanyagból készül. A (4) bemeneti nyílás biztosítja a minta és az érzékeny térfogat közötti gázcserét. A (5) Radamon érzékeny térfogata 7 cm^3 . A (6) papír szűrőfólia a levegőben lebegő szilárd aeroszolok és a radon bomlástermékek míg a (7) polietilén szűrőfólia a toron leválasztására szolgál. A (8) távtartó borda funkciója a detektor felület-térfogat arányának a növelése. A (9) CR-39 nyomdetektort (10) egy kétoldalú ragasztó rögzíti az alaplaphoz. A (11) kupola 0.3 mm -es speciális görbületű réz lemez, ami az egyenletes nyomsűrűséget biztosítja a nyomdetektor felületén. Lehetőség van TL detektorok beszerelésére is (12) a külső gamma-dózisteljesítmény egyidejű mérésének céljából. Összeszerelés után az alap- és a fedőlapot (13) ragasztószalaggal körberagasztjuk, ilyen módon az érzékeny térfogat és a külvilág között csak a szűrőfólián keresztül jöhet létre gázcsere.

A Radamon kísérleti kalibrációja 1991-ben az NRPB (National Radiation Protection Board, Chilton, Uk) radonkamrájában történt, amely szerint TASTRAK detektor esetén, standard maratás mellett $1 \text{ nyom/mm}^2/30 \text{ nap}$ (84 ± 6) Bq/m^3 légtéri radon aktivitáskoncentrációnak felel meg. Az 1991-es kalibrációs faktort használva a Radamon kiválóan szerepelt az 1995-ös és 1998-as EU(CEC) összeméréseken és a mért érték 1995-ben 7%-kal, 1998-ban csupán 1%-kal tért el a névleges radon expozíciós értéktől [Cs-01].

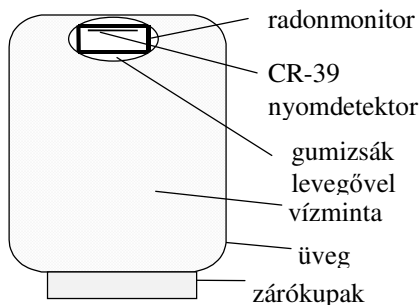
Az alfa detektálási érzékenység a detektor gyártástól számított korával kis mértékben változik, csökken. A kísérletekhez, radon felmérésekhez használt detektoranyagokra az érzékenységet félévenként aktualizáljuk. Ez az érték a dolgozat tárgyát képező kísérleti vizsgálatok idején $37 \text{ (nyom cm}^{-2}/\text{kBqm}^{-3}\text{nap)}$ volt.

III.1.2 Vízminták oldott radon- és rádiumtartalmának meghatározása nyomdetektoros módszerrel és metodikai mérések

A 90-es évek elején felmerült annak a lehetősége is, hogy vízminták radon-, illetve a radonon keresztül azok rádiumtartalmát is egy ilyen radonmonitorral vizsgáljuk, amennyiben a Radamont egy vízzáró, de a radon gázt jól átteresztő szigeteléssel tudjuk körülvenni. A Radon Csoport az ötlet egyik első megvalósításaként egyrészt helyszíni összehasonlító méréseket végzett Mátradereszkén ásott kutakban [Vá-97], másrészt ÉK Magyarország területén termálvíz-mintákat analizáltak laboratóriumi körülmények között [Va-95]. A módszer alkalmazása és összefoglaló leírása [Ha-96], [Ha-97] során felmerült problémákat egy körültekintő, gondos kalibráció elvégzésével sikerült megoldanunk [Hu-99]. Ennek eredményét a későbbiekben részletesen tárgyaljuk.

III.1.2.1 KÍSÉRLETI ELRENDEZÉS

Vízminták ^{222}Rn - és ^{226}Ra -tartalmának maratottonyom-detektoros meghatározásához a fent bemutatott Radamont használtuk, az III-4. ábrán látható kísérleti elrendezésben. A Radamont szorosan egy 15 μm vastag gumizacsába zártuk, a vízmintával teljesen megtöltött 0,72 dm^3 térfogatú üvegedénybe helyeztük és az üveget "légmentesen" lezártuk. A zártság felőli megbizonyosodás érdekében az expozíció ideje alatt az üvegeket kupakkal lefelé fordítva tároltuk. Az expozíciókat állandó hőmérsékleten 12-60 napig végeztük. A vízmintában lévő radon egy része a gumin keresztül bediffundál a radonmonitor légterébe. A gumifólia radon átteresztőképessége nagy, ezért a Radamonban mérhető radonkoncentráció gyorsan követi a vízmintában végbemenő változásokat. A Radamonban lévő ^{222}Rn és rövid életű, alfa-bomló bomlástermékeiből (^{218}Po , ^{214}Po) keletkező alfa-részecskéket a CR-39 nyomdetektor rögzíti.



III-4. ábra. Kísérleti elrendezés a vízmintában lévő radon és rádium maratottonyom-detektoros mérésére

Az expozíciós idő lejárta után a nyomdetektor lemezeket a szokásos standard maratási eljárásnak vetettük alá, azaz 6,25 mol/dm³ koncentrációjú NaOH oldatban 70°C-on 5 óráig marattuk. A ~10µm átmérőjű alfa nyomokat optikai mikroszkóp segítségével számoltuk le. Kis nyomsűrűségnél és a háttér meghatározásánál 1 cm²-es területet pásztáztunk, nagyobb nyomsűrűségeknél pedig csak akkora területet, amelyen ~3%-os statisztikus hibát adó 1000 körüli nyomot észleltünk. A nyomsűrűséget [nyom cm⁻²]-ben adtuk meg. Az, hogy az így kapott nyomsűrűség a vízminta ²²²Rn-vagy ²²⁶Ra-tartalmát reprezentálja-e, a minta előkészítésétől függ. Ennek részleteit a későbbiekben tárgyaljuk.

III.1.2.2 ELMÉLETI MEGGONDOLÁSOK

Kísérleti elrendezésünket a következő modellel helyettesítve vizsgáljuk a mérés során lejátszódó folyamatokat. Vegyünk egy vízzel megtöltött R₀ sugarú gömb alakú üvegedényt, a közepén egy R sugarú levegőbuborékkal (III-5. ábra). A buborékon belüli levegő radon aktivitáskonzentrációjának [C_A(t)] időbeli változása a kontinuitás egyenlettel írható le:

$$\int_V \frac{\partial C_A}{\partial t} dV = -\int_A j_D dA - \lambda \int_V C_A dV \quad (\text{III-1a.})$$

ahol V, illetve A a buborék térfogata és felszíne, λ a ²²²Rn bomlási állandója (2,1·10⁻⁶ s⁻¹), j_D a buborék középpontja felé irányuló ²²²Rn fluxussűrűség [Bq m⁻²s⁻¹] a buborék-víz határfelületen. Feltételezve, hogy C_A, illetve j_D független a helytől:

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} = -\frac{4R^2\pi}{4R^3\pi/3} j_D - \lambda C_A, \quad (\text{III-1b.})$$

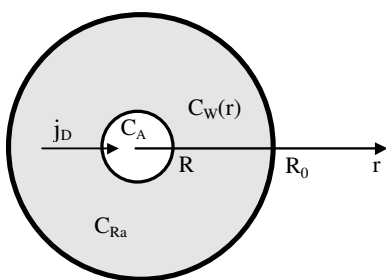
A víz radon aktivitáskonzentrációjának [C_w(r,t)] változását (Fick II. törvénye alapján, forrás és nyelő figyelembevételével) a következő differenciál-egyenlet írja le:

$$\frac{\partial C_w}{\partial t} = D\Delta C_w + \lambda(C_{Ra} - C_w), \quad (\text{III-2.})$$

melyben D a ²²²Rn diffúziós együtthatója vízben; C_{Ra} a vízminta ²²⁶Ra aktivitáskonzentrációja; és Δ a Laplace operátor. A ²²²Rn fluxussűrűség a buborék-víz határfelületen:

$$j_D = -D \left. \frac{\partial C_w}{\partial r} \right|_{r=R}, \quad (\text{III-3.})$$

ahol r a sugárirányú távolság.



III-5. ábra. Sematikus rajz a modellszámoláshoz

Az (1)-(3) differenciálegyenlet-rendszer megoldását a következő határfeltételek mellett keressük: i) az üveg határfelületén a diffúziós fluxussűrűség nulla, azaz $j_D(R_0)=0$; ii) a víz-levegő határfelületen pedig a radonkoncentráció minden időpillanatban az Ostwald-féle tényezőnek (L) megfelelően oszlik meg:

$$C_w(R, t) = L(T)C_A(t), \quad (\text{III-4.})$$

Az Ostwald tényező hőmérsékletfüggését H.L. Clever [Cl-79] által az irodalomból összegyűjtött kísérleti adatokra illesztett összefüggésből határoztuk meg, s az analitikusan kifejezve:

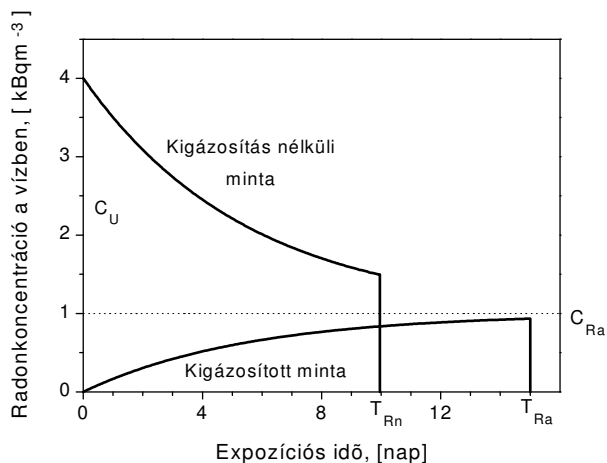
$$L(T) = 0,425 \exp(-0,05T) + 0,104, \quad (\text{III-5.})$$

ahol a T hőmérséklet °C-ban mérve.

A természetes vizek radon aktivitáskoncentrációja (C_{Rn}) két részből tevődik össze: i), a vízben oldott rádiummal bomlási egyensúlyban lévő radonból (C_{Ra}), mely a geológiai környezetből kivett mintában is folyamatosan termelődik és ii) a geológiai környezetben felvett, a víztároló réteg szilárd porózus közegében lévő ^{226}Ra -ból keletkező és a vízfázisba emanáló, radon (C_U) részből, melynek mennyisége a kiemeléستől számított 12-14 nap alatt egy tizedére csökken, mivel a ^{222}Rn felezési ideje 3,82 nap. Ezen két ismeretlen mennyiség Radamonnal történő meghatározását két független expozícióval tudjuk elvégezni. Radonkoncentráció meghatározás esetén, első expozíció, a mintagyűjtés helyszínén lezárt, kigázosítás nélküli vízminta kezdeti radon aktivitáskoncentrációja: $C_{w0} = C_{Ra} + C_U$ (amely egyben az (III-1b)-(III-3) és (III-6) differenciálegyenlet-rendszer kezdeti feltétele is). Az első expozíció hossza 12-14 nap a fent említett ok miatt. A rádium mérésekor, második expozíció, a vízmintát először kigázosítjuk, ezért a minta kezdeti radonkoncentrációja nulla (azaz az (III-1b)-(III-3)-ra és (III-6)-ra vonatkozó kezdeti feltétel rádiumkoncentráció meghatározás esetén: $C_{w0}=0$). A második expozíció hossza rendszerint 30-60 nap, ugyanis általában kis aktivitású vizek fordulnak elő, így még a radon egyensúlyi felépülése után is folytatni kell az expozíciót, hogy elegendő "eseményt" kapjunk. Feltételezzük továbbá, hogy a Radamon levegő térfogatában a kezdeti radonkoncentráció mindkét esetben

szintén nulla ($C_{A0}=0$). A fenti csatolt differenciálegyenlet-rendszer megoldásából megkaphatjuk a ^{222}Rn térbeli és időbeli változását az üvegedényen belül.

A kísérleti lépések folyamatát, valamint a vízminta radonkoncentrációjának időbeli változását a III-6. ábrán követhetjük végig, ahol C_{Ra} a rádiumhoz kötött azzal bomlási egyensúlyban lévő, míg C_U a vízben oldott az előbbi rádium bomlásától független radonkoncentráció.



III-6. ábra. A vízminta radonkoncentrációjának időbeli változása kigázosított és kigázosítás nélküli mintában

A keresett C_{Ra} és C_U aktivitáskoncentrációk, valamint a mérhető nyomsűrűségek közötti összefüggések további származtatását célszerű a rendszerben jelenlévő aktivitások vizsgálata alapján folytatni. Az üvegedényben lévő radonaktivitás (A_{Rn}) időbeli változását a következő differenciálegyenlet írja le:

$$\frac{dA_{\text{Rn}}}{dt} = \lambda A_{\text{Ra}} - \lambda A_{\text{Rn}}, \quad (\text{III-6.})$$

ahol A_{Ra} a vízmintában lévő ^{226}Ra , A_{Rn} pedig a vízmintában lévő ^{222}Rn aktivitása. Ha feltételezzük, hogy a keveredés mind a levegőben, mind a vízben jó, illetve a dinamikus egyensúly már kialakult közöttük, akkor $A_{\text{Ra}}=C_{\text{Ra}}V_W$ alakban írható fel, melyben V_W a víz térfogata a mérőedényben.

A fenti kezdő feltételeket figyelembe véve a (III-6) differenciálegyenlet megoldása kigázosítás nélküli vízminta esetén:

$$A_{\text{Rn}}(t) = (C_{\text{Ra}} + C_U e^{-\lambda t}) V_W, \quad (\text{III-7.})$$

kigázosított vízminta esetén pedig:

$$A_{\text{Rn}}(t) = C_{\text{Ra}} (1 - e^{-\lambda t}) V_W, \quad (\text{III-8.})$$

Ha a víz keveredése oly mértékű, hogy abban a radon mindig egyenletesen oszlik el, akkor a vízben és a levegőben lévő radon gáz teljes aktivitása minden időpillanatban felírható a következő alakban:

$$A_{Rn}(t) = C_W(t)V_W + C_A(t)V_A, \quad (\text{III-9.})$$

melyben V_A a Radamont magába foglaló gumi által bezárt levegő térfogata. Mivel (III-4) kigázosítás nélküli és kigázosított mintára is teljesül, ezért (III-9)-ből, (III-7)-(III-8) felhasználásával, kifejezhetjük a levegőtérfogatban lévő ^{222}Rn aktivitáskoncentrációt, amire kigázosítás nélküli esetben (III-10); kigázosított esetben pedig (III-11) adódik:

$$C_A^{Rn}(t) = (C_{Ra} + C_U e^{-\lambda t}) \frac{I}{L + V_A/V_W}, \quad (\text{III-10.})$$

és

$$C_A^{Ra}(t) = C_{Ra} (1 - e^{-\lambda t}) \frac{I}{L + V_A/V_W}. \quad (\text{III-11.})$$

A megfelelő mintákat T_{Rn} illetve T_{Ra} ideig exponálva a keletkező nyomosságok:

$$\rho_{Rn} = \beta \int_0^{T_{Rn}} C_A^{Rn}(t) dt, \quad (\text{III-12.})$$

és

$$\rho_{Ra} = \beta \int_0^{T_{Ra}} C_A^{Ra}(t) dt, \quad (\text{III-13.})$$

ahol $\beta=37,0$ nyom $\text{cm}^2/\text{kBqm}^3\text{nap}$, a Radamon levegőben lévő radonra vonatkozó érzékenysége, normál környezeti viszonyok között.

Integrálva és átrendezve az egyenleteket a következő kifejezéseket kapjuk a vízminta keresett ^{222}Rn (III-14) és ^{226}Ra (III-15) aktivitáskoncentrációjára:

$$C_U = \left(\frac{I}{G} \rho_{Rn} - T_{Rn} C_{Ra} \right) \frac{\lambda}{1 - e^{-\lambda T_{Rn}}}, \quad (\text{III-14.})$$

és

$$C_{Ra} = \frac{I}{G} \rho_{Ra} \frac{\lambda}{\lambda T_{Ra} + e^{-\lambda T_{Ra}} - 1} = \frac{\rho_{Ra}}{GT_{eff}}, \quad (\text{III-15.})$$

ahol $T_{eff} = T_{Ra} - \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda T_{Ra}})$ az effektív besugárzási idő, és

$$G = \frac{\beta}{L(T) + V_A/V_W}, \quad (\text{III-16.})$$

a módszer érzékenysége. G az L megoszlási tényezőn keresztül függ az expozíció hőmérsékletétől, valamint függ a gumi által bezárt levegő és a vízminta térfogatarányától is. Ha a Radamont magába foglaló gumi által bezárt levegő térfogata elhanyagolható a víz térfogatához képest, akkor $G=\beta/L(T)$. A módszer

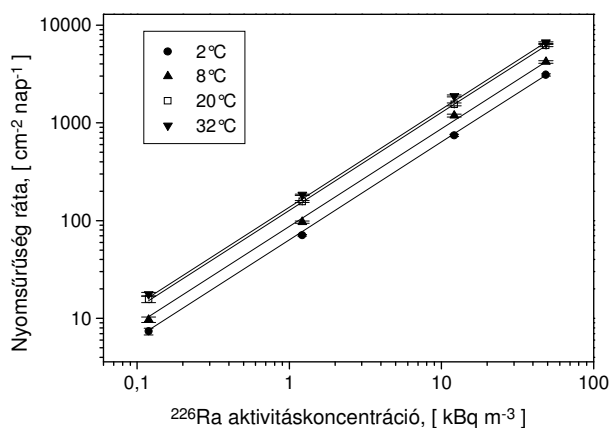
érzékenységét (ún. kalibrációs állandót) kísérleti úton közvetlenül is meghatározhatjuk.

III.1.2.3 KALIBRÁCIÓ ÉS A MÓDSZER ÉRZÉKENYSÉGÉNEK HŐMÉRSÉKLETFÜGGÉSE

A kalibrációhoz és az érzékenység hőmérsékletfüggésének részletes vizsgálatához négy ^{226}Ra kalibrációs oldatot készítettünk 0,119; 1,216; 12,16 és 48,53 kBq m^{-3} névleges aktivitáskoncentrációkkal (20 liter, $\text{pH}=3$), hígítással technikával Ra-standard oldatból kiindulva.

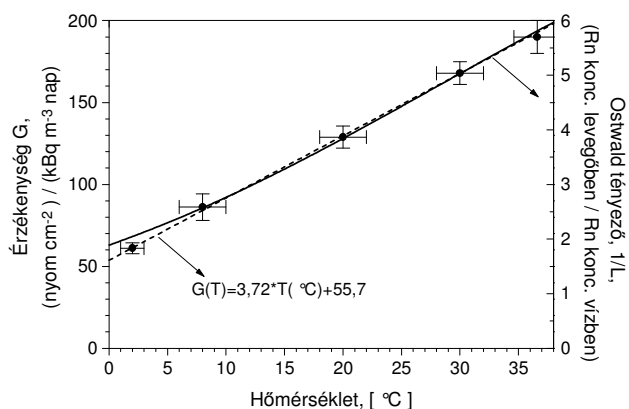
Az expozíciókat négy párhuzamos mérési sorozatban végeztük: 2°C -on és 8°C -on hűtőszekrényben, 20°C -on szobahőmérsékleten, és 32°C -on légkeveréses termosztátban. A hőmérséklet-ingadozás minden esetben $1\text{-}2^\circ\text{C}$ körüli érték, az expozíciós idő pedig 30 nap volt. Az alkalmazott TASTRAK detektorok háttéré a $20\text{-}40$ [nyom cm^{-2}] tartományba esett. A háttérrel az előkészített lemezek közül véletlenszerűen kiválasztott, és az exponált detektorokkal együtt maratott detektorokon 1 cm^2 -en mértük. Kiértékelés után ábrázoltuk a detektorokon leszámolt, egy napra vonatkozó nyomsűrűséget a kalibrációs oldatok aktivitáskoncentrációjának függvényében, így megkaptuk a négy különböző hőmérsékletre tartozó kalibrációs egyenest. Ezt mutatja a III-7. ábra.

A kalibrációs egyenesek meredeksége az adott hőmérsékletre tartozó, kísérletileg meghatározott érzékenységet adja meg. Lineáris skálán történő ábrázolásakor a kapott egyenesek eltérő meredeksége, míg log-log skála esetén az egyenesek párhuzamos eltolódása mutatja a módszer érzékenységének hőmérsékletfüggését. A kísérleti kalibrálás során megállapítottuk, hogy a nyomsűrűség ráta és a rádium aktivitáskoncentráció közötti összefüggés $0,1\text{-}100\text{ kBq/m}^3$ tartományban lineáris. A vizsgálható mérési tartomány MBq/m^3 ^{226}Ra aktivitáskoncentrációig terjedhet.



III-7. ábra. Különböző expozíciós hőmérsékletre tartozó kalibrációs egyenesek vízminták rádiumtartalmának Radamonnal történő mérése esetén

A III-8. ábra az expozíciós idő alatti hőmérséklet függvényében mutatja a kísérletileg meghatározott érzékenységeket és hibáikat. A folytonos vonal a (III-5.) egyenlet alapján számolt Ostwald tényező (azaz a radon gáz vízfázisban és levegőfázisban való megoszlási hányadosának) hőmérsékletfüggését követi. Az illeszkedés nagyon jónak mondható, főleg a három magasabb hőmérsékletű mérési pont esetében, tehát a módszer érzékenysége hőmérsékletfüggése az Ostwald tényező hőmérsékletfüggését követi.



III-8. ábra. Radamonnal történő rádium meghatározási módszer kísérletileg mért érzékenységének és az Ostwald tényezőnek a hőmérsékletfüggése

Látható, hogy a mérési pontokra egyenes is illeszthető, amely az expozícióknál leginkább alkalmazott 8-36°C-os hőmérsékleti tartományban, szintén jól illeszkedik az Ostwald tényező hőmérsékletfüggését leíró görbére. Ezért ezen hőmérsékleti tartományban a módszer érzékenységét, 0,72 dm³-es mérőedény használatakor, az expozíció hőmérsékletének ismeretében a $G(T) = 3,72 \cdot T(°C) + 55,7$ egyenlet alapján is kiszámolhatjuk.

A fentiekből következik, hogy ezzel a módszerrel a minták rádium- és radonkoncentrációját, az expozíciós hőmérsékletre tartozó érzékenység felhasználásával kell meghatározni.

III.1.2.4 AZ ÉRZÉKENYSÉG VÍZMINTA TÉRFOGATÁTÓL VALÓ FÜGGÉSE

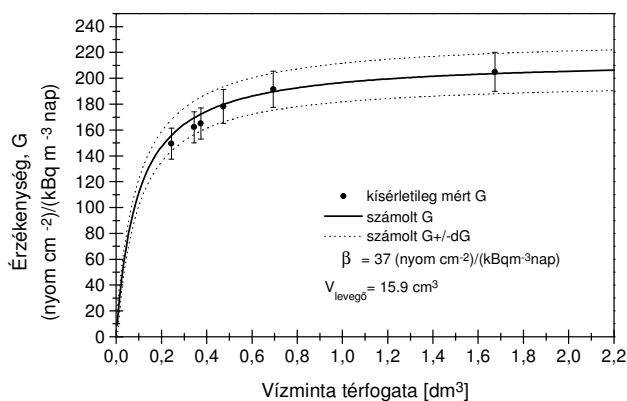
A fenti vizsgálatainkhoz mindig 0,72 dm³ térfogatú, kereskedelmi forgalomban könnyen beszerezhető üvegedényeket (befőttes üvegeket) használtunk. A terepi mintázás könnyítése érdekében viszont kívánatos lenne a vízminták térfogatának csökkentése. A módszer érzékenysége azonban az expozíciós hőmérsékleten kívül a vízminta és a gumín belüli levegő

térfogatarányától is függ (lásd (III-16.)-os összefüggést). Érdekes tehát vizsgálni, hogy meddig csökkenthető a mérőedény térfogata a Radamon adott mérőtérfogatához képest, anélkül, hogy az a módszer érzékenységének rovására menne.

A térfogatfüggést vizsgáló kísérlethez a $12,16 \text{ kBqm}^{-3}$ -es kalibrációs oldatot használtuk ~ötszörös hígításban, s a hígított oldat aktivitáskoncentrációjára $2,4 \text{ kBqm}^{-3}$ -t kaptunk. Ezzel az oldattal színültig töltöttünk 5-5 darab $0,72 \text{ dm}^3$, $0,5 \text{ dm}^3$, $0,4 \text{ dm}^3$, $0,37 \text{ dm}^3$, $0,27 \text{ dm}^3$ és 2 db $1,7 \text{ dm}^3$ térfogatú üveget, behelyeztünk egy-egy Radamont és párhuzamosan exponáltunk a légkeveréses termosztátban $36,6^\circ\text{C}$ -on, 14,8 napig.

A maratott nyomdetektorokon mért nyomsűrűségekből a (III-15.)-ös egyenlet alapján kiszámoltuk a különböző térfogatú vízmintákhoz tartozó kísérletileg mért érzékenységet. A hibával ábrázolt pontok az 5-5 párhuzamos mérésből kapott adatok számtani átlagai és standard deviációi. Az érzékenységeket a (III-16.)-os összefüggéssel, elméleti úton is kiszámoltuk a vízminta térfogatának függvényében. Az elméleti görbe hibája ($\pm dG$) 7,6%, amely a Radamon érzékenység (β) hibájából és a megoszlási tényező (L), az expozíció hőmérséklet és a vízmintába bezárt levegőtérfogat becslés hibájából adódik. A számolt és mért érzékenységeket mutatja a III-9. ábra a vízminta térfogatának függvényében.

Számolásunk során β értékét rögzítettük, a gumiban lévő levegő (V_A) térfogatát pedig szabad paraméternek tekintettük. A legkisebb négyzetek módszerével $15,9 \pm 2,1 \text{ cm}^3$ -nél kaptuk a legjobb egyezést a kísérletileg mért és az elméleti úton meghatározott érzékenységek között. Ez a térfogat teljesen összhangban van a Radamon külső-belső méretével, valamint a minta lezárásakor az üvegben még bentmaradó néhány cm^3 levegő mennyiségével.



III-9. ábra. Az érzékenység vízminta térfogatától való függése 36,6°C-on

Jól látható, hogy az érzékenység térfogatfüggése telítési görbe jellegű és a 0,72 dm³-es, szokásosan használt üvegedényünk esetén már elérjük a telítési érték közel 90%-át. Végül levonhatjuk azt a következtetést, hogy ennek a kereskedelmi forgalomban olcsón beszerezhető mérőedénynek a mérete mérésünk szempontjából optimálisnak mondható. Ugyanis a vízminta térfogatának növelése már nem jár jelentős érzékenység növekedéssel, míg ellenkező esetben a görbe gyorsan letörik. Kis víztérfogat esetén a kísérleti adatok szórása növekszik, mert a Radamonon kívüli, nem elég jól reprodukálható levegőtérfogat rontja a mérés pontosságát.

III.1.2.5 A VÍZMINTA KEVEREDÉSÉNEK VIZSGÁLATA

A nyomdetektoron mérhető nyomsűrűség arányos a Radamon belsejében a besugárzás ideje alatt kialakuló átlagos radon aktivitáskoncentrációval. Kérdés azonban, hogy a mérőtérfogatban és a vízminta egészében kialakuló ²²²Rn koncentrációk aránya megfelel-e a víz és a levegő közti megoszlási tényezőnek (L) az expozíció minden pillanatában; vagyis i) a diffúzió elég gyors-e a gumifólián keresztül és ii) a gumifóliával határolt mérőtérfogat közelében kialakuló koncentráció csökkenés elhanyagolható-e a vízminta radonkoncentrációjához képest? Azaz kell-e gondoskodni a vízminta mesterséges úton való keveréséről vagy elegendő a vízmintában lévő hőmérséklet inhomogenitások miatt fellépő természetes keveredés?

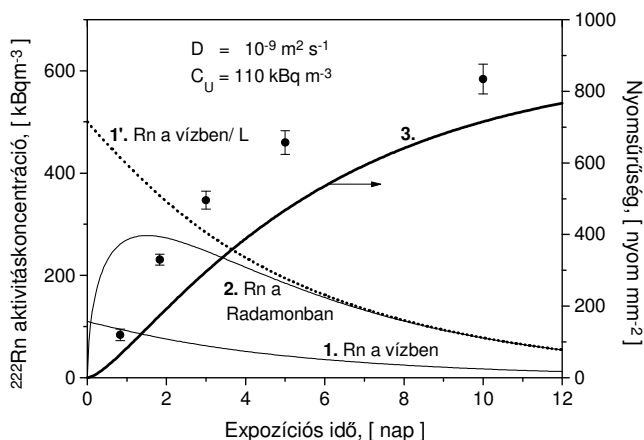
A fenti kérdések megválaszolására modellszámolásokat végeztünk mérőeszközünkre vonatkozóan a radon vízre ismert $D = 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ diffúziós együtthatójával [Na-88] i) a vízben és a Radamonban (III-10a. és III-11a. ábrákon az 1. és a 2. görbe) kialakuló radon aktivitáskoncentrációk időbeli változására, ii) és annak vizsgálatára, hogy a Radamonban valóban az Ostwald-féle megoszlási tényezőnek megfelelően (1'. görbe) alakul-e az aktivitáskoncentrációk aránya a besugárzási idő minden időpillanatában. Két esetet vizsgáltunk: a vízminta i) csak oldott radont (III-10a. ábra), ii) csak rádiumot (III-11a. ábra) tartalmaz. Mindkét esetre kiszámoltuk a nyomdetektoron várható nyomsűrűséget a besugárzási idő függvényében. Ezt az összefüggést az ábrákon a 3. görbe mutatja. A modellszámolásból kapott 3. görbét összevetettük az besugárzási idő függvényében kísérletileg mért nyomsűrűségekkel, melyeknek a mérési hibával ábrázolt pontok felelnek meg az ábrákon.

Az első kísérlethez nagy radon aktivitáskoncentrációjú vízmintát használtunk. Kb. 5 liter desztillált vizet egy nagy felületű edényben 1 hétre bezártunk egy 140 literes hordóba, melyben egy emanáló forrás segítségével kb. 1 MBqm⁻³ telítési radon aktivitáskoncentráció érhető el. A hordó kinyitása után a vizet gyorsan megkevertük és 5 azonos, Radamonnal együtt bezárt mintát készítettünk. A hordó kinyitásától az ötödik minta bezárásáig kevesebb, mint 2 perc telt el. A

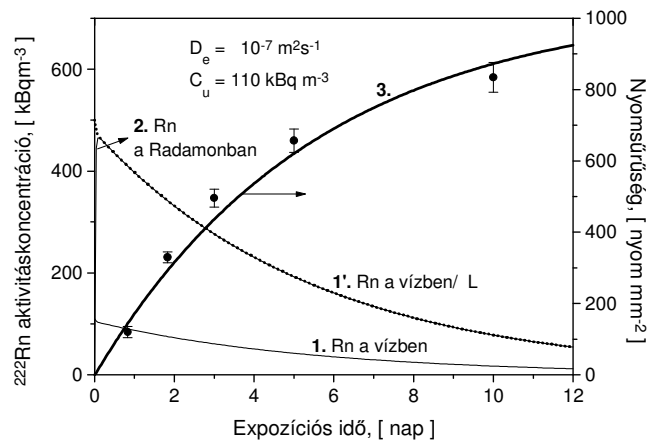
mintákat 26-28 °C-on exponáltuk. Az egyes minták expozíciós ideje 1, 2, 3, 5 és 10 nap volt.

A III-10a. ábrán látható esetben a számolásokat az irodalomból ismert $10^{-9} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ radon vízbeni diffúziós együtthatójával végeztük. Jól látható, hogy ekkor a modellszámolással kapott és a kísérletileg mért nyomsűrűség adatok (3. görbe) nem hozhatók fedésbe, főleg a kezdeti szakasz eltérő meredeksége miatt. A számolt görbe meredekségét a diffúziós együttható értéke határozza meg. A Radamonban lévő levegő aktivitáskonzentrációja (2. görbe) lassan közelíti a megoszlási tényező (L) által meghatározott (1'. görbe) értéket, a Radamon körül kialakuló koncentrációgradiens miatt.

A számolt nyomsűrűség meredeksége azonban elég jó egyezést mutat a mért adatokkal, ha a radon vízbeni diffúziós együtthatóját $10^{-7} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ -nak vesszük (III-10b. ábra). Ekkor a Radamonban lévő radonkoncentráció is rövid időn belül megközelíti a megoszlási tényező által meghatározott értéket (1'. görbe). A számolt és mért adatok jó egyezése azt sugallja, hogy az üvegekben lévő vízminták az expozíció ideje alatt a bennük fellépő hőmérséklet-inhomogenitások miatt kialakuló konvekciós áramlások által természetes úton is jól keveredtek. Ezt a folyamatot keveredéssel-diffúzióknak is szokás nevezni. Mínt hogy a vízminta kezdeti radon aktivitáskonzentrációját nem ismertük, ezért az illesztés során szabad paraméterként kezeltük, s a fenti D_e ún. "effektív diffúziós együtthatóval" számolva $C_U=110 \text{ kBq m}^{-3}$ értéknél kaptuk a legjobb illesztést.



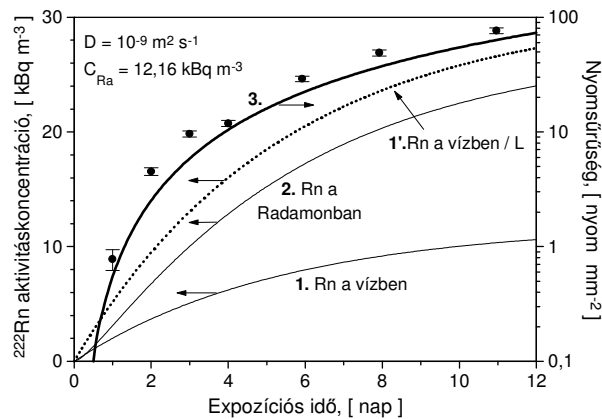
III-10a. ábra. Modellszámolás csak radont tartalmazó vízminta esetén C_w -re (1.) és C_A -ra (2.) az irodalomból ismert D diffúziós együtthatóval (bal oldali skála). Az expozíciós idő függvényében számolt nyomsűrűséget a (3.) görbe, a mérési adatokat a hibával ábrázolt pontok mutatják (jobb oldali skála)



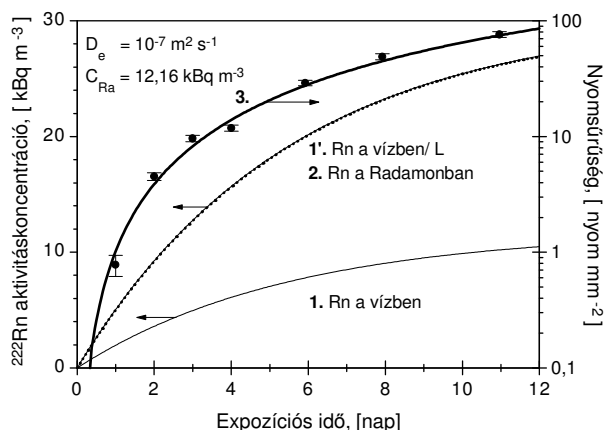
III-10b. ábra. Modellszámolás csak radont tartalmazó vízminta esetén C_w -re (1.) és C_A -ra (2.) $D_e=100D$ effektív diffúziós együtthatóval (bal oldali skála). Az expozíciós idő függvényében számolt nyomásgörbe (3.) jól illeszkedik a mérési pontokra (jobb oldali skála)

A második kísérlethez ismert ^{226}Ra aktivitáskonzentrációjú, $C_{\text{Ra}}=12,16 \text{ kBq m}^{-3}$, kalibrációs oldatot használtunk. Hét egyforma mintát készítettünk, melyeket expozíció előtt kigázósítottunk. Az expozíció ideje alatt a mintákat hűtőszekrényben 8°C -on tároltuk. Az expozíciós idő 1 és 11 nap között változott.

A kapott nyomás adatoknak a modellszámolásokkal való összehasonlítása a III-11a. és III-11b. ábrákon látható. A III-11a. ábrán szemléltetett esetben a 2. görbe sohasem közelíti meg a megoszlási tényező által meghatározott értéket (1'. görbe), a Radamont tartalmazó levegőbuborék körüli állandó koncentrációgradiens miatt. Ugyanakkor a III-11b. ábrán szemléltetett esetben, keveredési diffúziót feltételezve, a 2. görbe hamar és jól közelíti az 1'. görbét.



III-11a. ábra. Modellszámolás csak rádiumot tartalmazó vízminta esetén C_W -re (1.) és C_A -ra (2.) az irodalomból ismert D diffúziós együtthatóval. Az expozíciós idő függvényében számolt és mért nyomsűrűségeket a legfelső folytonos vonal (3.) illetve a hibával ábrázolt mérési pontok mutatják



III-11b. ábra. Modellszámolás csak rádiumot tartalmazó vízminta esetén C_W -re (1.) és C_A -ra (2.) keveredő vízmintát imitáló $D_e=100D$ effektív diffúziós együtthatóval. Az expozíciós idő függvényében számolt nyomsűrűség görbe (3.) jól illeszkedik a mért adatokra

Az eredmények ebben az esetben is azt mutatják, hogy a vízmintákban intenzív keveredés történik, mert csak a nagyobb effektív diffúziós együttható alkalmazásával kapunk egyezést a számolt és a mért nyomsűrűség adatok között.

A keveredési vizsgálat során tehát arra a következtetésre jutottunk, hogy az expozíció ideje alatt nem szükséges mesterségesen keverni az üvegben lévő vízmintákat, mert a temperált körülmények között is fellépő kis hőmérsékletgradiensek megfelelő mértékű gyors keveredést tartanak fent bennük. Ez a gumifólia nagy gázáteresztésével együtt biztosítja, hogy a Radamon légterében az Ostwald-féle megoszlási tényezőnek megfelelően alakul a radonkoncentráció végig az expozíció ideje alatt. Ez nagyon fontos eredmény abból a szempontból, hogy a vízmintákban való maratottonyom-detektoros radon és rádium mérési technikánk egyszerűen kivitelezhető legyen.

III.1.2.6 A MÓDSZER PONTOSSÁGA

A Radamonnal végzett vízminta ^{226}Ra - és ^{222}Rn -tartalom meghatározási módszer pontosságát több tényező befolyásolja. A hibaforrások egy része szisztematikus, más része statisztikus jellegű. Ha ismerjük egyenként az egyes hibaforrások hibáját akkor a Gauss-féle hibaterjedési törvény alapján jó

közelítéssel megbecsülhetjük a meghatározás során kapott radon (III-14.), és rádium (III-15.) aktivitáskoncentrációk mérési hibáját is.

Ebben az alfejezetben részletesen a rádiumtartalom meghatározás hibaszámolását mutatjuk be. A (III-14.) formula alapján számolt ^{222}Rn aktivitáskoncentráció hibáját az itt bemutatotthoz hasonlóan becsülhetjük azzal a különbséggel, hogy az utóbbi esetben a lentebb felsorolt befolyásoló tényezők között szerepel még a rádium aktivitáskoncentráció (C_{Ra}) is.

Rádium aktivitáskoncentráció meghatározás esetén, mint a (III-15.) egyenletben látható, a módszer pontosságát a következők tényezők hibája befolyásolja: nyomsűrűség (ρ); az érzékenység hőmérséklet- és térfogatfüggése miatt a besugárzási hőmérséklet (T), az Ostwald-féle megoszlási tényező (L), a vízminta térfogata (V_w) és a gumi által bezárt levegő térfogata (V_A); a Radamon levegőben lévő radonra vonatkozó érzékenysége normál környezeti viszonyok között (β).

A nyomsűrűség (ρ), [alfa-nyom/cm²] hibája több részből tevődik össze. Egyrészt a nyomdetektoron mindig van valamekkora háttér-nyomsűrűség (ρ_b), másrészt a nyomszámlálásnak van egy statisztikus hibája. Ezen kívül jelentős lehet még a leszámolt terület hibája is. A háttér nyomsűrűséget egy kb. 13 x 15 cm²-es CR-39 lemez különböző helyeiről véletlenszerűen kiválasztott 1 cm² területű detektorokon végzett nyomszámlálásból határozzuk meg. Általában 5-10 detektordarabot használunk erre a célra. A háttér-nyomsűrűséget ezeken a detektorokon talált nyomsűrűségek átlagaként határozzuk meg, a háttér nyomsűrűség hibájának pedig ezen nyomsűrűségek szórását használjuk. Tapasztalataink szerint ez a szórás általában jelentősen nagyobb, mint ami a háttér-nyomsűrűség számolás statisztikai hibájából várható lenne. Ez azt jelenti, hogy a detektorlemezen lévő háttér-nyomsűrűség eloszlása nem egyenletes, hanem vannak a lemeznek kevésbé és jobban háttéres területei. Ez a bizonytalanság szisztematikus hibákat okoz. Ezért a standard hiba helyett a szórást választottuk a háttér-nyomsűrűség hibájául (σ_{ρ_b}). A háttér-nyomsűrűségnek és hibájának elsősorban a detektálás alsó határának megállapításánál van kiemelkedő jelentősége. A detektálás alsó határánál lényegesen nagyobb ^{226}Ra -tartalom esetén a mérés pontosságát elsősorban a besugárzott detektorokon mért nyomsűrűség hibája határozza meg.

A mért nyomsűrűséget a $\rho_m = N/A$ összefüggésből határozzuk meg, ahol N a leszámolt nyomok száma és A a leszámolt terület. Ez alapján a „mért” nyomsűrűség statisztikus hibája:

$$\sigma_{\rho_m} = \sqrt{\left(\frac{\partial \rho_m}{\partial N} \sigma_N\right)^2 + \left(\frac{\partial \rho_m}{\partial A} \sigma_A\right)^2} = \sqrt{\frac{N}{A^2} + \left(\frac{N}{A^2} \sigma_A\right)^2} \quad (\text{III-17.})$$

ahol $\sigma_N = \sqrt{N}$ a leszámolt nyomszám hibája és $\sigma_A = A \cdot 0,025$ a terület mérési hibája.

A nettó nyomsűrűség a mért és a háttér nyomsűrűségek különbsége: $\rho_n = \rho_m - \rho_b$, ennek hibája:

$$\sigma_{\rho_n} = \sqrt{\sigma_{\rho_m}^2 + \sigma_{\rho_b}^2}, \quad (\text{III-18.})$$

Az expozíciós idő hibáját elhanyagoltuk, mert ezt viszonylag nagy pontossággal meg lehet mérni.

A (III-15.) egyenlet alapján látható, hogy a rádium meghatározás pontosságát befolyásolja a módszer érzékenysége (III-16.), mely több tényezőtől is függ. Tekintsük át részletesen ezeket a befolyásoló tényezőket is.

Az $L(T)$ megoszlási tényező hibája két részből tevődik össze. Egyrészt a besugárzási hőmérséklet hibájából, másrészt a megoszlási tényező hőmérsékletfüggését leíró (III-5.) formula hibájából. A vízmintákat a besugárzás ideje alatt állandó hőmérsékleten termosztátban tároljuk. A besugárzási hőmérsékletet a termosztátba beépített valamint kontrollként egy 0 és 50°C-on kalibrált higanyos hőmérővel mértük. Véletlen időpontokban végzett méréseink szerint a termosztátban a hőmérséklet a névleges hőmérséklet körül kb. $\sigma_T = 1^\circ\text{C}$ pontossággal ingadozott. A megoszlási tényező ebből eredő hibája:

$$\sigma_{L_i} = \sqrt{\left(\frac{\partial L}{\partial T} \sigma_T\right)^2} = \left|\frac{dL}{dT} \sigma_T\right| = |0,0212 \exp(-0,05 T) \sigma_T| \quad (\text{III-19.})$$

Valamekkora szisztematikus hiba abból is adódik, hogy az (III-5.) egyenlet nem pontosan adja a megoszlási tényező értékét. A 2-35°C hőmérséklet-tartományban az irodalomból vett mért értékek és az ezekre (III-5.) egyenlet alapján illesztett görbe által adott megoszlási értékek között az átlagos eltérés 1%, a maximális eltérés 2%. Ha ezt a hibát 1%-nak vesszük, akkor a megoszlási tényező hibáját a következő kifejezéssel adhatjuk meg:

$$\sigma_L = \sigma_{L_i} + L \cdot 0,01, \quad (\text{III-20.})$$

Egy másik lehetséges hibaforrás a víz minta és a Radamont magába foglaló gumi által bezárt levegő térfogatának bizonytalanságából ered. Az üveg térfogata: $V_u = (720 \pm 4) \text{cm}^3$. A víztérfogat meghatározásához ismernünk kell, hogy a gumiba csomagolt Radamon mennyi vizet szorít ki az üvegből. A Radamon külső térfogata: $V_{R_k} = R_k^2 \pi h = (1,75 \text{ cm})^2 \pi 1,8 \text{ cm} = 17,3 \text{ cm}^3$, míg belső érzékeny térfogata: $V_{R_b} = R_b^2 \pi h = (1,5 \text{ cm})^2 \pi 1 \text{ cm} = 7,1 \text{ cm}^3$. Ezen kívül további levegő térfogat van még a gumin belül, amellyel együtt a teljes levegőtérfogat kb. $V_A = (15,9 \pm 2,1) \text{cm}^3$ (lásd a III-9. ábra, térfogatfüggés illesztése). A Radamon és a körülötte maradó légtérfogat figyelembevételével a teljes kiszorított víztérfogat kb. $V_k = (26,7 \pm 2,1) \text{cm}^3$. Ezek alapján a víz minta

térfogata: $V_w = V_{\bar{u}} - V_k = (693,3 \pm 4,5) \text{ cm}^3$. A vízminta térfogatának becsült relatív hibája 1 % körüli érték.

A Radamon levegőben való radontartalom meghatározására vonatkozó érzékenységét a Svéd Sugárvédelmi Intézet (SSI, Stockholm) és az angliai Nemzeti Sugárvédelmi Bizottság (NRPB) radonkamráiban végzett besugárzásokkal határoztuk meg, mint azt a Radamon részletes bemutatásánál, a III.1.1.3. alfejezetben leírtam.

A Radamon érzékenysége a standard maratás esetén függ az alkalmazott CR-39 maratottnyom-detektor érzékenységétől. A CR-39 érzékenysége a detektor gyártását követő néhány hét alatt gyorsan csökken, majd ezt követően egy jóval lassúbb, de évekig tartó további csökkenés figyelhető meg. A detektor érzékenységének ezt a csökkenését ^{252}Cf 6,1 MeV energiájú alfa-részecskéivel való besugárzással rendszeresen ellenőrizzük. A CR-39 nyomdetektor 6,1 MeV-es alfa-részecskékre való érzékenységéből meghatározzuk a Radamon radonkoncentráció meghatározására vonatkozó érzékenységét. Ezen mennyiség hibája a ^{226}Ra aktivitáskoncentráció meghatározásnál szisztematikus hibaként lép fel. Ezt a hibát a nemzetközi összeméréseken való, 10 db egyidejű mérés szórása alapján kb. 6-7%-nak vehetjük. A Radamon érzékenysége egy kb. 2 éves CR-39 nyomdetektor esetén így $\beta = (37 \pm 2,2)$ (nyom cm^{-2}) / ($\text{KBqm}^{-3}\text{nap}$).

A módszer érzékenységének (G) hibabecsléséhez vezessük be az $\alpha = L + V_A/V_w$ jelölést, ekkor

$$\sigma_\alpha = \sqrt{\sigma_L^2 + \left(\frac{\sigma_{V_A}}{V_w}\right)^2 + \left(\frac{V_A}{V_w^2} \sigma_{V_w}\right)^2} \quad (\text{III-21.})$$

Mint ahogy ekkor (III-16.) alapján, $G = \beta/\alpha$, a ^{226}Ra meghatározási módszer érzékenységének hibája:

$$\sigma_G = \sqrt{\left(\frac{\sigma_\beta}{\alpha}\right)^2 + \left(\frac{\beta}{\alpha^2} \sigma_\alpha\right)^2} \quad (\text{III-22.})$$

Végül a (III-15.) formulából számolt ^{226}Ra aktivitáskoncentráció hibájára a következő összefüggés adódik:

$$\sigma_{C_{Ra}} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\rho_n}}{T_{\text{eff}} G}\right)^2 + \left(\frac{\rho_n}{T_{\text{eff}} G^2} \sigma_G\right)^2} \quad (\text{III-23.})$$

Az általunk készített program, a fenti egyenletek felhasználásával, a bemenő paraméterek megadása után mind rádium-, mind radontartalom meghatározás esetén megadja a keresett rádium és radon aktivitáskoncentrációkat illetve elvégzi a hibaszámítást is.

A módszer relatív hibája, 100 Bqm^{-3} ^{226}Ra -tartalom esetén, kb. 10%. A módszer alsó detektálási határa ^{226}Ra -ra 30 napos expozíciós idő és 36°C-os expozíciós hőmérséklet esetén 50%-os relatív hibával 5 Bqm^{-3} .

III.2 VÍZMINTÁK RÁDIUMTARTALMÁNAK MEGHATÁROZÁSA GAMMA-SPEKTROMETRIAI MÓDSZERREL

Környezeti minták természetes radioaktivitásának meghatározására széles körben alkalmazzák a gamma-spektrometriai módszert. Azonban a természetes vizek általában igen kicsi rádiumtartalma miatt ezen mennyiség meghatározása nehézségekbe ütközik. A pontos meghatározás nagy mennyiségű minta felhasználását, illetve a minták kémiai előkészítését (azaz kémiai elválasztás során a rádium kis térfogatba való koncentrációját) teszi szükségessé.

A ^{226}Ra aktivitáskoncentráció meghatározása további nehézségekbe ütközik: egyrészt gondot jelent a ^{226}Ra ($E_\gamma=186,10$ keV) gamma-vonalának csupán 3,5%-os hozama és a kis energia miatt a mintában történő nagy önabszorpció; másrészt a természetes környezetben jelenlévő ^{235}U -nak is van egy majdnem azonos energiájú ($E_\gamma=185,72$ keV) gamma-vonala, ami sokkal nagyobb hozamú (54%) és mint háttér mindig megjelenik a rádium gamma-vonala mellett. Ezek a problémák kiküszöbölhetők, ha a ^{226}Ra aktivitáskoncentráció meghatározást a béta-bomló, rövid felezési idejű radon bomlástermékek gamma-vonalainak felhasználásával végezzük, amelyek megfelelő energiával és nagy hozammal rendelkeznek. Ebben az esetben azonban biztosítanunk kell a minta zártságát, hogy a radon ne "szökhesse ki", mert ekkor a ^{226}Ra és rövid felezési idejű leányelemei közt nem alakulhat ki a bomlási egyensúly.

Vizsgálataink során, a fent bemutatott maratottnyom-detektoros módszer mellett, egyes vízminták ^{226}Ra -tartalmát gamma-spektrometriás módszerrel is meghatároztuk. Méréseinket a DE TTK-ATOMKI Környezetfizika Tanszékén, Ortec gyártmányú (30%-os relatív határfokú), nagy tisztaságú (HPGe) germánium detektoros gamma-spektrométerrel végeztük, relatív módszerrel. A módszer alapja, hogy a vizsgált mintát, azonos módon elkészített, azonos geometriai elrendezésű és ismert aktivitáskoncentrációjú standard mintával hasonlítjuk össze.

III.2.1.1 A MINTÁK ELKÉSZÍTÉSE

Vízminták rádiumtartalmát gamma-spektrometriai módszerrel kétféle módon is meghatároztuk: (i) bárium-szulfáttal történő radiokémiai elválasztás (ún. kémiai lecsapatásos) módszerével és (ii) közvetlen módon, ún. Marinelli geometriát alkalmazó, kémiai elválasztás nélküli módszerrel.

A radiokémiai elválasztás módszerével történő vizsgálatokhoz 5-10 l vízminta szükséges, melyek rádiumtartalmát bárium-szulfáttal $[\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4]$ együtt csaptuk le. A leválasztást külön ilyen célokra gyártott "elválasztó tölcserékben" végeztük. Az elválasztó tölcser falán végbemenő adszorpció visszaszorítása érdekében a vizet cc. HNO_3 -val megsavanyítottuk. Ezután a minta mennyiségétől függetlenül, 50 cm^3 0,5 M BaCl_2 -ot adtunk hozzá, hogy a különböző mintáknál kapott

csapadék mennyisége mindig ugyanannyi legyen (1,9-2,1 gramm közötti érték), így biztosítva azt, hogy a minták térfogata és abszorpciós tulajdonsága megegyezzen, elkerülve ezzel a korrekció alkalmazását. A vízhez adott bárium-ionokat és így a rádium-ionokat is, nagy fölöslegben adott tömény H_2SO_4 -val csaptuk le bárium-szulfát formájában. Ezzel a módszerrel a kémiai kihozatal jobb mint 99%. Ezután a mintát 1-2 óráig, a csapadék leülepedéséig állni hagyjuk, majd a tölcésből közvetlenül vákuumszűrő lapra szűrtük. A kapott csapadékot desztillált vízzel átmostuk, hogy a benne lévő savmaradéktól megszabaduljunk. A mintát egy 29 mm átmérőjű, 5 mm magasságú peremes alumínium tálkába preparáltuk, szárító szekrényben teljesen megszáritottuk és egy 0,3 mm vastag fém korongnak a tálkára történő ragasztásával lezártuk, hogy a keletkező radont a mintában tartsuk. A lezárt mintát 25-30 napig tároltuk az analízis előtt (ez 6-8 radon felezési idő, s ezalatt a telítési érték 98-99%-a alakul ki).

A *Marinelli geometriát alkalmazó, kémiai elválasztás nélküli módszerrel* történő rádium meghatározáshoz 770 cm^3 vízminta szükséges. A vízmintával megtöltött Marinelli edényt lezárás nélkül a detektorra helyezve és kb. 12 óras mérési idővel mérve, a rádium gamma-vonalának intenzitása alapján eldönthetjük, hogy pl. a várhatóan kis rádiumtartalom miatt szükséges-e a mintát radiokémiai elválasztással preparálnunk vagy a Marinelli edényben hagyva kémiai elválasztás nélkül dolgozhatunk tovább. Ha a kémiai elválasztás nélküli módszerrel mérünk, akkor a Marinelli edényt színültig megtöltjük a vizsgálandó mintával, "légmentesen lezárjuk" és az analízis előtt 25-30 napig tároljuk.

A 30 napos várakozási idő eltelte után, amikor a szekuláris egyensúly már kialakult a rádium és leányelemei között, a minta rádiumtartalmát gamma-spektrométerrel megmértük. Akár a radiokémiai elválasztás módszerével, akár a Marinelli geometriát alkalmazó módszerrel dolgoztunk, a vízminta rádiumtartalmának meghatározása a III-1. táblázatban látható radioizotópok monoenergiás gamma-vonalai alapján történt. A spektrum kiértékelése számítógépes program segítségével történik.

III-1. táblázat. A rádiumtartalom meghatározásához használt gamma-energiák

Radioizotóp	Gamma-energia	Hozam (%)
^{226}Ra	186,10 keV	4
^{214}Pb	241,98 keV	8
	295,21 keV	19
	351,92 keV	37
^{214}Bi	609,31 keV	46
	1120,21 keV	15
	1764,50 keV	16

A módszer kimutatási határa a vízminta térfogatától és a mérési időtől függően ~5 mBq/l.

A mérések, de különösen a kalibráció során vigyázni kell a minták zártságára. A minták zártságának vizsgálata során azt használtuk ki, hogy a ^{226}Ra 186,1 keV-os gamma-vonalának intenzitása nem függ a minta zártságától. Kis hozama ellenére ezen vonalat könnyen mérhetjük, ha a kalibrációs oldatba elég (500-1000 Bq) aktivitást viszünk be. A rádium leányelemeinek gamma-vonalai jól detektálhatók, viszont ezek intenzitása a minta zártságától függ. Minél jobb egy minta zártsága, annál nagyobb intenzitásokat kapunk a leányelemek gamma-vonalaira, mert ekkor a rádium bomlástermékeinek teljes sora jelen van a mintában.

Mivel az általunk használt gamma-vonalak közül a 295,21 keV-os, a 351,92 keV-os és a 609,31 keV-os vonaloknak legnagyobb a hozama, ezért ezeket használhatjuk fel a kalibrációs minták zártságának vizsgálatához. A zártság vizsgálat során a kalibrációs minták fenti három gamma-vonalára és a rádium 186,1 keV-es vonalára kapott intenzitások hányadosát hasonlítjuk össze (I_{295}/I_{186} , I_{352}/I_{186} , I_{609}/I_{186}). A mért kalibrációs minták közül az a legzártabb, melynél ez a hányados a legnagyobb adódik.

A minták zártság vizsgálatának segítségével ellenőrizhetjük a technika megbízhatóságát; meghatározhatjuk adott geometriára az intenzitás viszonyokat; megvizsgálhatjuk a radiokémiai elválasztás módszerének a kihozatalát, melyre a mérések alapján minden esetben 99% körüli értéket kaptunk. A kalibrációs oldatok többszöri vizsgálata során a mért intenzitások szórása nem haladta meg a 2%-ot, ami bizonyítja a mérések jó reprodukálhatóságát.

III.3 VÍZMINTÁK RADONTARTALMÁNAK MEGHATÁROZÁSA LUCAS-KAMRÁN TÖRTÉNŐ GÁZÁRAMOLTATÁSSAL

A Lucas-kamrás módszer az egyik legrégebbi módszer vízminták radontartalmának meghatározására, mely során 0,5–1,0 liter vízmintát gázmosó palackba töltünk és gázt ("öreg" levegőt, nitrogént) áramoltatunk át rajta. A vízben található radon a buborékokkal együtt távozik a vízből. Ügyelni kell a csatlakozások légmentes lezárására, a radonvesztés csökkentése érdekében. Az átfúvatott levegőt egy szcintillációs kamrába szivattyúzzák és a kamrát légmentesen lezárják. A radon és leányelemei közötti egyensúly beállása után a levegő aktivitáskoncentrációja mérhető.

Szerbin Pével az OSSKI Környezeti Sugáregészségügyi Osztályán, egy közös OTKA kutatási szerződés keretében, a budapesti termálvizek radontartalmának meghatározását ezzel a módszerrel végezte az általunk használt maratottonyom-detektoros módszerrel párhuzamosan.

Radonkoncentráció meghatározás során a radont a helyszínen szeparálta a vízmintából egy WG 1001 típusú Pylon-gyártmányú (Pylon Electronics Development Inc., Canada) berendezéssel, melynek segítségével a vízben oldott gázokat a radonnal együtt egy ZnS-bevonatú, 110A típusú "Lucas" szcintillációs kamrába áramoltatta át. A radon és a rövid felezési idejű bomlástermékek között

három óra múltán beáll a szekuláris egyensúly. Ezután fotoelektron sokszorozóval megmérte a beütésszámot és ismert aktivitású etalon (RNC Pylon-standard) mérése során kapott hatások ismeretében számította a vízminta ^{222}Rn aktivitáskoncentrációját. A kimutatási határ a kamrák háttérétől függően 8-10 mBq/l volt.

A módszer előnye az alacsony kimutatási határ, továbbá az, hogy nem igényel minta előkészítést és vegyszeres munkát. Hátránya, hogy mérés után a "Lucas"-kamrákat nitrogénnel vagy "öreg" levegővel hosszan át kell öblíteni, a bentmaradt radon eltávolítása végett, ami miatt megnő a kamra újrahaználhatóságának ideje és nő a kamra háttere. A buborékoltatás hatásfokától és a veszteségektől függően nőhet a hibalehetőség.

III.4 VÍZMINTÁK RÁDIUMTARTALMÁNAK MEGHATÁROZÁSA KÉMIAI ELVÁLASZTÁS UTÁN LUCAS-KAMRÁS MÓDSZERREL

Szerbin Pével, a közösen gyűjtött budapesti vízminták rádiumtartalmát, a maratottonyom detektoros méréseinkkel párhuzamosan emanációs módszerrel határozta meg. A módszer alapja, hogy a rádiumizotópok koncentrációjának meghatározása laboratóriumi körülmények között, kémiai elválasztás után, gáz halmazállapotú bomlástermékeik – radon és toron – egyensúlyi aktivitása alapján történik [Sz-86].

A vízminták rádiumtartalmának meghatározásához 2-5 liter minta szükséges. A vízmintához Ba^{2+} hordozót adnak, majd bepárolják. A száraz maradékot 2M HCl-ban oldják és 5%-os H_2SO_4 hozzáadásával leválasztják a $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ csapadékot, majd centrifugálás során leválasztják a ^{228}Ra -t, ^{226}Ra -t és ^{224}Ra -t anyaelemeiktől. Az oldhatatlan csapadékkal elkevert $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ csapadékot desztillált vízzel mossák, majd további kémiai eljárásokkal $\text{Ba}(\text{Ra})\text{CO}_3$ -á alakítják. A kémiai kitermelés, gravimetriásan meghatározva, átlagosan 80%-os. A mintát ezután egy kb. 100 cm^3 Bunsen-féle gázmosó palackba töltik és azt lezárják. A ^{226}Ra mérést legalább 7,6 nap, vagyis az egyensúlyi radon 75%-ának felépülése után végzik. A mérésre használt műszer magyar gyártmányú, ZnS-dal bevont Lucas-kamrákkal ellátott NP-402 P típusú (MÉV- Mecsek Ércbányászati Vállalat) berendezés volt. A műszer kimutatási határa a használt kamrák háttérétől és a mérési időtől függően 4-7 mBq/l volt.

IV MÉRÉSI EREDMÉNYEK

IV.1 AZ ALKALMAZOTT MÉRÉSI MÓDSZEREK ÖSSZEHASONLÍTÁSA

Az alkalmazott radonmonitoros és gamma-spektrometriai módszerek rádium kalibrációs oldatokkal történő kalibrálása után ún. "összehasonlító" kalibráló méréseket végeztünk, melyek során ismertelen rádiumtartalmú vízminták rádiumkoncentrációját párhuzamosan határoztuk meg az előzőekben bemutatott maratottnyom-detektoros módszer mellett kétféle gamma-spektrometriai módszerrel is. Egyrészt feltáratlan vízmintában közvetlen módon, ún. Marinelli geometriát alkalmazva, másrészt 10 liter vízből, kémiai feltárás után kapott szilárd Ra-sót tartalmazó minta mérése útján.

A vizsgálatokhoz Észak-Kelet Magyarország három ismert fürdőjének működő hévízkútjaiból gyűjtött mintákat használtuk. A földesi és tiszavasvári NaCl, míg a két mezőkövesdi H₂S tartalmú hévizek. Ezen kutak néhány jellemző adatát tartalmazza a IV-1. táblázat. A gyógyfürdők földrajzi elhelyezkedése a Függelék 1. ábráján látható.

IV-1. táblázat. A vizsgált hévízkutak néhány jellemző adata

Hévízkút helye	Talpmélység (m)	Víz hőmérséklet (°C)	Vízhozam (l/min)
Földes	1344	66	1008
Tiszavasvári	1200	67	1642
Mezőkövesd 1/A	1300	63	1000
Mezőkövesd 2	650	43-44	-

A vízmintákat a helyileg illetékes vízügyi igazgatóságok és üzemeltető technikai személyek engedélyével, a fürdők és strandok üzemelése idején, működő kutakból 20 literes új műanyag kannákba gyűjtöttük. A vízminták fűrt, szűrözött kutakból valók, ahogy a helyszínen feltörnek illetve kiemelésre kerülnek. A vízminták pH-ját még a helyszínen 2-3-as értékre állítottuk be cc. HNO₃ hozzáadásával, hogy az oldott ásványi anyagok oldatban maradjanak és megakadályozzuk az ionok kiülését a kanna falára [Be-90].

A vizsgált mélységi vizekre, a különböző módszerekkel kapott rádium aktivitáskoncentrációk mérési eredményeit a IV-2. táblázat foglalja össze.

IV-2. táblázat. Különböző módszerekkel meghatározott ^{226}Ra aktivitáskoncentráció észak-kelet magyarországi termálvizekben, [Bq/l]

Mintavétel helye	Analitikai módszer		
	Marinelli-edényes γ -spektrometria	Radiokémiai	Maratottonyom-detektor (Radamon)
Mezőkövesd 1/A	$6,78 \pm 0,16$	$6,14 \pm 0,12$	$6,44 \pm 0,17$
Mezőkövesd 2	$1,65 \pm 0,09$	$1,48 \pm 0,01$	$1,43 \pm 0,04$
Földes	$0,28 \pm 0,03$	$0,26 \pm 0,01$	$0,26 \pm 0,04$
Tiszavasvári	$0,33 \pm 0,03$	$0,37 \pm 0,01$	$0,38 \pm 0,02$

Látható, hogy a maratottonyom-detektoros eredmények még alacsony aktivitáskoncentrációk esetén is jó egyezést adnak a pontosabb gamma-spektrometriai módszerekkel. A három módszerrel kapott majdnem azonos mérési eredmények igazolják mindhárom módszer jó használhatóságát. Azonban bármelyik módszert alkalmazzuk is vizsgálatainkhoz, igazán méréseink során ismerjük meg a használatukkal járó előnyöket és hátrányokat. A következőkben a radiokémiai γ -spektrometria és a maratottonyom-detektoros módszer általam megismert hátrányait és előnyeit mutatom be külön-külön mindkét esetben.

A **maratottonyom-detektoros módszer** egy egyszerű és jól alkalmazható technika, azonban alkalmazása során a következő, hátránynak is tekinthető, **nehézségekkel** kell számolni:

- Feltöltéskor ügyelni kell, hogy minél kevesebb levegő benmaradásával zárjuk le az üveget, mert a bent maradt levegőbuborék térfogata hozzáadódik a levegőtérfogathoz, és így csökkenti az érzékenységet.
- A megbízható méréshez biztosítanunk kell a lezárt üvegek szivárgásmentességét.
- Az besugárzás ideje alatt állandó hőmérsékletet kell biztosítanunk a kalibrációs állandó hőmérsékletfüggése miatt. Ez a probléma termosztát alkalmazásával megoldható.
- A mikroszkóp alatt való reprodukálható nyomszámlálás nagy gyakorlatot igényel, azaz ügyelni kell, hogy minden lemezen kb. ugyanazon mérettartományba eső nyomokat számoljunk le. Ma már részben ez a probléma is kiküszöbölhető automata, számítógép vezérelt nyomszámlálók alkalmazásával.
- Az besugárzási idő viszonylag hosszú, de a kiértékelés rövid idő alatt megtehető.
- Nagy oldott radontartalmú vízminták esetén a rádiummérést csak az oldott radon teljes eltávolítása (lebomlás, kigázosítás) után szabad végezni.
- Az oldott gázok kiűzését nagyon gondosan és kitartóan kell végezni. 30-40 perces sűrített levegővel vagy nitrogénnel való buborékoltatás megfelelő

eredményt ad. A vízminták melegítésével és ultrahangozásával a gáztalanítás hatásfoka növelhető.

- A módszert CO_2 tartalmú minták esetén radonkoncentráció meghatározásra nem célszerű alkalmazni, mert a Radamonba bediffundáló CO_2 csökkenti a CR-39 nyomdetektor érzékenységét. A probléma kiküszöbölhető a CO_2 eltávolításával, s így a kigázósított vízmintában rádiumkoncentráció meghatározást már lehet végezni.

Ezen hátrányokkal szemben a módszer **előnye**, hogy:

- A vizsgálatokat kémiai feltárás nélkül végezhetjük.
- A mérések mintaigénye rendkívül kicsi, kevesebb mint 1 liter.
- Nemcsak az oldott rádium, hanem az oldott radon mennyisége is meghatározható.
- Nagy számú és terepen gyűjtött minták vizsgálata esetén is jól alkalmazható olcsósága, kis helyigénye és mozgathatósága révén.
- Érdeemes figyelni a három nagyságrendet átfogó linearitásra, amely igen nagy méréstartományban történő meghatározást tesz lehetővé, ezért a módszer 10 mBq/l-től nagy aktivitásokig jól alkalmazható.
- A vízminták radon és rádium aktivitáskoncentrációja ~10% pontossággal határozható meg.

A **gamma-spektrometriai módszernél** felmerülő problémák:

- Kis aktivitású vízminták radiokémiai vizsgálatához viszonylag nagy mennyiségű, legalább 10 liter minta szükséges.
- Méréseink során ügyelni kell, hogy szennyező anyagot (standardok készítése során) ne vigyünk a rendszerbe.
- Mivel a vizsgálat kémiai lecsapáson alapszik, melyhez tömény vegyszereket használunk, ügyelnünk kell a lehetséges balesetek elkerülésére, valamint a mintához adandó vegyszerek plusz költséget jelentenek.
- Itt is biztosítanunk kell a minták zártságát, egyébként a kapott eredmények alulbecsültek lesznek, és várni kell 30 napot, hogy a rádium és bomlástermékei között "beálljon" a radioaktív egyensúly.
- A germánium detektorok csak a folyékony nitrogén hőmérsékletén használhatók és használaton kívül is ezen a hőmérsékleten kell tartani. A mérőrendszer üzembe helyezése és fenntartása egyaránt nagy beruházást és költséget igényel.
- A detektorok hatásfoka csak nagy térfogat esetén közelíti meg pl. a NaI(Tl) kristályokét, ezért valamint a várhatóan kis aktivitású minták miatt hosszú mérésekre van szükség.

Ezen módszer használatával járó **előnyök**:

- A feltárás nélküli Marinelli geometria nagyon hasznos a minták gyors válogatására, melynek segítségével eldönthetjük, hogy a további

mérésekhez melyik módszert alkalmazzuk, és jó az 1 Bq/l feletti minták közvetlen mérésére. Előnye továbbá a kis minta (770 cm³) igény.

- A mérőrendszer jó energiafelbontású, ezért nagyon pontos méréseket végezhetünk.
- Jól kalibrált spektrométer esetén a számítógép kész eredményeket ad, ezért a minta elkészítése és a rendszer kalibrálása után a mérés és a kiértékelés automatikus.
- Nemcsak a vízben oldott ²²⁶Ra, hanem a ²²⁸Ra valamint más radioaktív izotópok meghatározására is alkalmas.
- A módszer kimutatási határa ~5 mBq/l a vízminta térfogatától és a mérési időtől függően.

Összegzésként elmondhatjuk, hogy a nyomdetektoros módszer nagy jelentőségű nagy számú minta és 10%-os pontosságú vizsgálatok esetén. Nagy pontosságú mérésekhez azonban a gamma-spektroszkópiát alkalmazzuk. Mindkét módszer kb. ugyanannyi időt és munkabefektetést igényel, nyomdetektoros módszernél inkább a detektorlemezek kiértékelése, míg gamma-spektrometriánál a minták elkészítésére kell több időt fordítani.

A fent leírtak alapján jól látható, hogy a vizek rádiumtartalmának meghatározásához bármelyik módszer jól alkalmazható, nyugodtan mondhatjuk hogy a vizsgálat célszerűsége és a lehetőségeink szabják meg, hogy melyik technikát alkalmazzuk méréseink során.

IV.2 BUDAPESTI TERMÁLVIZEK ²²⁶Ra- ÉS ²²²Rn-TARTALMA

Geotermikus mérések alapján megállapították, hogy Budapest termálvizekben a világ egyik leggazdagabb városa. A 22°C és 76°C közötti hőmérsékletű langyos és meleg vizű források évtizedek óta nagy bőségben és állandó összetétellel adják a föld mélyéről feltörő vizeket. A főváros minden langyos és meleg vize megegyezik abban, hogy mélyreható törésvonalak mentén, 200 millió éves triász mész- és dolomit üledékekből feltörő, jelentős mésztartalmú karsztvíz.

Budapesten is, mint a világ sok más helyén, alkalmaznak gyógyfürdő terápiát és ivókúrát különböző betegségek kezelésére. A kezeléseket általánosan kiváltott jótékony hatások rendkívül sok tényezőből állnak össze. Szerepet játszanak benne pl. a termálvíz és a gyógyiszap fizikai és kémiai tulajdonságai, amelyekhez szervesen hozzátartozik a radioaktív izotóptartalom is, továbbá a fürdőhely klimatikus viszonyai, amelyekbe szintén beletartozik a levegőben lévő radioizotópok hatása, de közrejátszik még sok egyéb tényező is. Megbízható tudományos eredmények, amelyek akár a fürdőket ellátó "forrásokban", akár a fürdőhelyek légtérében jelenlévő radioaktív izotópok közvetlen pozitív vagy negatív hatásait egyértelműen ki tudták volna mutatni a legutóbbi időkig nem ismeretesek, mivel ezek hatásai nem különíthetők el más, fentebb felsorolt tényezők befolyásoló hatásaitól.

1998-ban radon- és rádiumtartalom mérésekkel igyekeztünk gazdagítani a fővárosi termálvizekre vonatkozó ismereteket. Méréseink során meghatároztuk a budai oldalon található Gellért-hegyi és József-hegyi forráscsoport fürdő és ivókúrák során hasznosított hévizeinek ^{222}Rn - és ^{226}Ra -tartalmát az általunk kifejlesztett radonmonitoros módszerrel.

A vízminták radon- és rádiumtartalmát párhuzamosan a mi méréseinkkel másik két módszerrel, a III. fejezetben bemutatott Lucas-kamrás módszerekkel Szerbin Pével, a Frederic-Joliot Curie Országos Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutatóintézetben dolgozó együttműködő partnerünk is meghatározta.

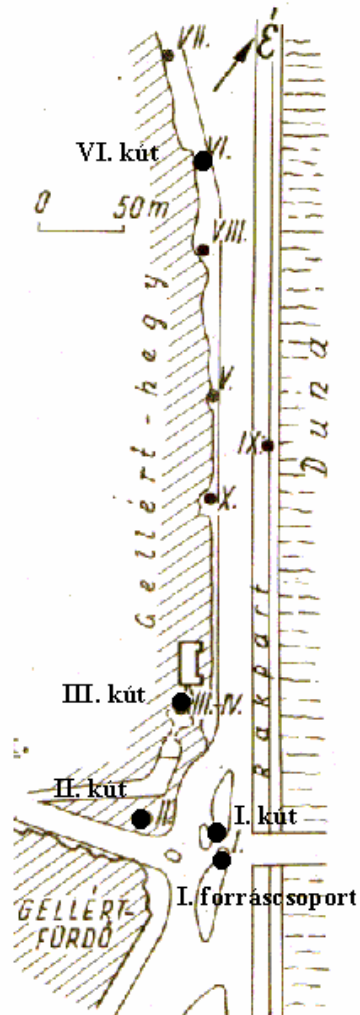
A Gellért-fürdő környéke földtani szempontból igen érdekes. A Gellért-hegy idős közettömegét alkotó és itt a felszínen található triász kori dolomitok, mészkövek 1000-1500 m mélységben alaphegységi rögöket alkotnak, melyre nagy vastagságú eocén, oligocén, miocén és pannon kori rétegek települtek. A Gellért-fürdő vizsgált forrásai és a gyógyfürdőt ellátó Régi forráscsoport *dolomitból* fakad. A Régi forráscsoport forrásfoglalása körüli medencében a vízállás a Duna-vízállásának megfelelően és a kitermelt vízmennyiséggel arányosan változik. A forrásvíz hőmérséklete 38-43°C között változik. A Gellért-fürdő forrásainak az elhelyezkedése a IV-1. ábrán látható [Bu-68].

A Rudas-fürdő a Gellért-hegy keleti oldalán helyezkedik el, az Erzsébet-híd budai hídfőjénél. A fürdő vízellátását eredetileg a hegy lábánál fakadó források biztosították. A 30-as évek elején került sor fúrásokra, melyek csupán 20-40 méter mélybe hatolnak és mindegyik dolomitba települt. Érdekessége ennek a területnek, hogy az itt található források és kutak hozama a Duna vízállásától függően változik, ami a Duna e szakaszán található szökevényforrásokat lecsapoló, illetve magas Duna vízállás esetén visszadúzzasztó hatásának a következménye. Az itt található 15 foglalt forrás és 6 fúrott kút mindegyike *dolomitból* fakad. A Rudas Ivócsarnok kútjai 100 méter mélyek, legmélyebbek a területen. A források vízének hőmérséklete 35-42°C. A fúrt kutak közül a *Juventusz*-kút a legnagyobb hozamú, 200-500 liter/perc.

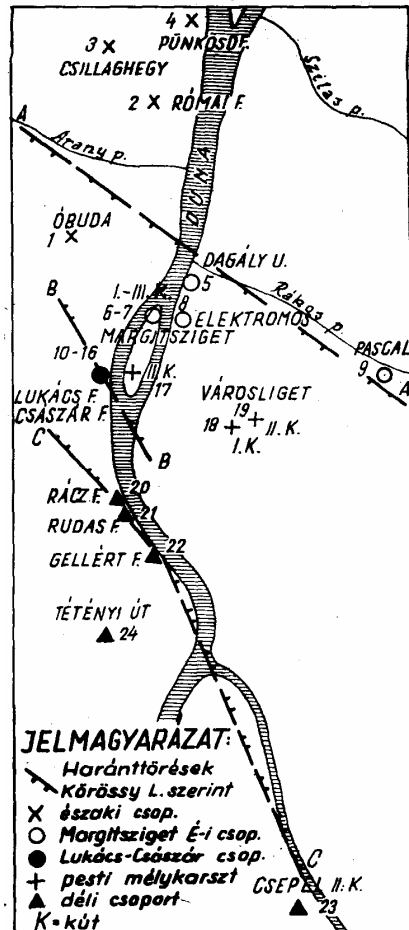
A Rác-fürdő a Gellért-hegy északi lábánál fekszik. A fürdő környékén a dolomiton néhány méter vastag kavicsos üledék alatt pirites, kalciteres, repedezett budai márga található. A fürdő természetes forrásai ebben a márgában fakadnak. A források hőmérséklete 40-42°C.

A József-hegy és a Duna közötti keskeny, parti sávon található a Lukács-fürdő. Az itt elhelyezkedő források nagyon változatos képet mutatnak. A fürdő területén egymás mellett fakadnak a langyos (22-27°C-os) és a meleg (41-54°C-os) vizek. A langyos vizek, természetes forrásokból, a József-hegy lábánál fakadnak, míg a meleg források a Duna vonalához közel törnek felszínre, részben természetes forrásokból, nagyobb részben fúrott kutakból. A természetes forrásokat kavicsrétegbe foglalták, míg a fúrások márgarétegekbe hatolnak. Ezen a területen a felszínre jutó termálvizek hideg és meleg komponensből tevődnek össze; ezen különböző jellegű vizek keveredési aránya szabja meg a víz hőmérsékletét és vegyi összetételét. Az itt feltörő vizek, a Duna kavics leplében elhelyezkedő

talajvízzel is keverednek. Az általunk vizsgált források közül a Római- és a Malom-forrás tartozik a langyos források csoportjába, míg a IV. és V. számú kút a meleg vizes források közé tartozik. Az ivókutat is ellátó IV. kút mélysége 100,6 méter, oligocén kori márgába mélyítve, hőmérséklete pedig 48-50°C.



IV-1. ábra. A Gellért-fürdő forrásai



IV-2. ábra. Budapest fürdői és a főbb törésvonalak

A IV-2. ábrán a budapesti fürdők elhelyezkedését és a főbb törésvonalakat figyelhetjük meg [Sz-68].

Az általunk Radamonnal és Szerbin Pével által Lucas-kamrás módszerrel mért radon mérési eredmények a IV-3. táblázatban láthatók, míg a rádium mérési eredményeket a IV-4. táblázatban foglaltuk össze.

IV-3. táblázat. Budapesti termálvizek különböző módszerekkel mért radontartalma (Bq/l)

Mintavétel helye	^{222}Rn (Radamon)	^{222}Rn (Lucas-kamrás PYLON AB-5)	
Gellért-fürdő			
Gellért-hegyi forráscsoport	Régi forráscsoport	49±3	52,2±1,4
	I. kút	47±3	57,7±0,6
	II. kút	84±5	82,8±1,7
	III. kút	49±3	53,9±2,3
	VI. kút	104±6	131,6±1,6
	Rudas Ivócsarnok		
	Juventusz	135±9	154,7±2,2
	Attila	289±17	363,2±3,9
	Hungária	393±23	338,7±2,4
Rác-fürdő			
	Rác Nagy forrás	–	122,5±2,6
Lukács-fürdő			
József-hegyi forráscsoport	Boltív forrás	18±1	18,8±0,2
	Római forrás	65±4	60,7±3,4
	IV. kút	22±1	22,2±0,8
	V. kút	20±1	21,8±0,8
	Ivókút, a IV. kútból táplálva	–	–

A vizsgált budapesti hévízmintákban mért oldott ^{222}Rn -tartalom három nagyságrenddel nagyobb, mint a ^{226}Ra aktivitáskoncentráció, ami megfelel a várakozásnak, mivel az irodalmi adatok szerint is termál- és ásványvizekben ez általános jelenség.

A József-hegyi és Gellért-hegyi források rádiumtartalma a forráscsoportok szerint elkülöníthető. Ez azzal magyarázható, hogy a Gellért-hegyi források dolomitból fakadó, magasabb hőmérsékletű termális karsztvizek, míg a József-hegyi csoportba tartozó Boltív és Római források felszín közeli langyos karsztvizek. A Lukács-fürdő IV. és V. fúrott kútjai mélyből feltörő termálvizet

szolgáltatnak, melyek alacsonyabb rádiumtartalmát az okozza, hogy a felszálló források a felszín közelében keverednek a meleg vizet felszínre vezető hasadékos kőzetekre közvetlenül rátelepült kavicsrétegekben tárolt talajvízzel.

IV-4. táblázat. Budapesti termálvizek különböző módszerekkel mért rádiumtartalma (mBq/l)

Mintavétel helye	^{226}Ra (Radamon)	^{226}Ra (Lucas-kamrás NP-402)	
Gellért-fürdő			
Gellért-hegyi forráscsoport	I. forráscsoport	837±83	715
	I. kút	659±65	578
	II. kút	626±62	493
	III. kút	657±65	–
	VI. kút	785±77	713
	Rudas Ivócsarnok		
	Juventusz	646±64	522
	Attila	834±81	500
	Hungária	699±69	532
Rác-fürdő			
	Rác Nagy forrás	800±78	697
Lukács-fürdő			
József-hegyi forráscsoport	Boltív forrás	73±8	99
	Római forrás	48±6	91
	IV. kút	261±25	239
	V. kút	251±25	211
	Ivókút, a IV. kútból táplálva	265±26	–

A források és kutak különböző módszerekkel kapott radon aktivitáskoncentráció adatai jól egyeznek még alacsony aktivitások esetén is. Rádium meghatározás során egyes vízmintáknál a maratottnyom-detektoros módszerrel kapott eredmények 20%-kal is meghaladják a radon emanációs módszerrel kapottakat. Az eltérést okozhatja, hogy a radon emanációs módszer kémiai elválasztáson alapul, melynek nem 100%-os a kémiai kihozatala, míg a maratottnyom-detektoros módszer kémiai feltárás nélküli módszer.

A Hungária-, Attila- és Juventus-források vizének radon- és rádiumtartalmát, mint a II.3.4. alfejeztben említettük, Szerbin Pével és Kasztovszky Zsolt

korábban már vizsgálták (lásd II-6. táblázat). A könnyebb áttekinthetőség kedvéért ezekre a forrásokra kapott korábbi és jelenlegi mérési adatokat a IV-5. táblázatban összefoglaltuk.

IV-5. táblázat. A Rudas-fürdő forrásainak ^{222}Rn és ^{226}Ra aktivitáskoncentrációja különböző módszerekkel mérve

		Mintavétel helye		
		Attila	Juventus	Hungária
^{222}Rn (Bq/l)	Radamon (Atomki)	289	135	393
	PYLON AB-5 (OSSKI)	363	155	339
	PYLON AB-5 [Sz-96] (OSSKI korábbi mérés)	211	126	67
	Folyadék-szcintilláció (ELTE Atomfizikai Tsz. korábbi mérés) [Ka-96]	300-355	139-305	252-258
^{226}Ra (mBq/l)	Radamon (Atomki)	834	646	699
	NP-402 (OSSKI)	500	522	532
	NP-402 [Sz-96] (OSSKI korábbi mérés)	2150	-	-
	Folyadék-szcintilláció (ELTE Atomfizikai Tsz. korábbi mérés) [Ka-96]	1620-1680	-	-

Látható, hogy radonkoncentráció mérés esetén a különböző módszerekkel kapott mérési eredmények elég jól egyeznek, bár az azonos módszerrel (PYLON AB-5), de korábbi időpontban mért adatok az Attila- és a Hungária-forrás, különösen ez utóbbi esetén nem hozhatók fedésbe. A kapott eltéréseket magyarázhatjuk az időjárási tényezőknek, a Duna vízállásának, valamint a Rudas Ivócsarnok "vízforgalmának" a termálvízben oldott radon mennyiségét befolyásoló hatásával. Rádium meghatározás esetén a korábbi mérések eredményei nagy eltérést mutatnak a fentebb bemutatott Radamonos és Lucas-kamrás módszerekkel kapott eredményekhez képest.

A kapott mérési eredmények további elemzéséhez adatokat gyűjtöttünk a vizsgált hévizek hőmérsékletéről, összes oldott szilárd ásványianyag-tartalmáról és néhány oldott alkotórészének mennyiségéről, melyek a IV-6. táblázatban láthatók [Sz-68]. A Gellért-és Lukács-fürdő hévizeinél a feltüntetett kutak és források adatai jellemzőek az adott területre, ezáltal megfelelően jellemzik a terület többi forrását illetve kútját is. Vizsgáltuk, hogy van-e kapcsolat a táblázatban feltüntetett adatok és a vizsgált források rádiumtartalma között.

IV-6. táblázat. A vizsgált hévízkutak és források vizének néhány jellemző adata [mg/l]

Mintavétel helye	Hőm. (°C)	Össz. old. ásv.	Ca ²⁺	Mg ²⁺	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	²²⁶ Ra (mBq/l)
Gellért-fürdő							
II. kút	45	1650	200	65	380	575-585	626
I. források csoport	46	1450-1650	170-195	55-65	335-400	565-600	837
Rudas Ivócsarnok							
Attila	45	1530	185-200	55-65	365-400	575-605	834
Juventusz	45	1550-1635	180-200	50-60	350-400	575-600	646
Hungária	43	-	180-195	55-65	350-400	575-590	699
Rác-fürdő							
Nagy forrás	42	1480-1590	175-195	50-60	340-380	550-585	800
Lukács-fürdő							
Boltív forrás	21	770-880	115-125	35-50	100-140	445-465	73
Római forrás	21	770-870	110-120	40-45	100-135	445-470	48
IV. kút	50	1150-1250	145-155	34-45	150-210	540-570	261

A táblázat alapján megállapítható, hogy a Gellért-hegyi forrásokhoz tartozó források és kutak közel azonos hőmérsékletűek és közel azonos mennyiségű oldott ásványianyagot tartalmaznak részenként és összességében is a kutak közti nagyobb távolságok ellenére is. Ezzel szemben a József-hegyi források igen kis távolságokra lévő hévizei igen eltérő hőmérsékletűek és oldott ásványi anyag tartalmuk is széles tartományban helyezkedik el.

Megfigyelhető továbbá, hogy a hőmérséklet emelkedésével nő a hévizek oldott ásványianyag- és rádiumtartalma is, mivel a magasabb hőmérsékletű víz több ásványianyagot képes kioldani a vele érintkező kőzetből.

IV.2.1 Sugáregészségügyi értékelés

A vizsgált hévizek közül a Rudas Ivócsarnokban az Attila-, a Juventusz- és a Hungaria-források vizét, valamint a Lukács-fürdő Ivócsarnokában a IV. kútból táplált ivókút vizét ivókúráként, sőt mindennapos fogyasztásra is használják, ezért szükséges a vízzel a szervezetbe kerülő radon és rádium által okozott sugárterhelés becslése. A becsléseket felnőtt korosztályra (>17 év) végeztem el, mivel ezen vizek fogyasztásában leginkább ez a korosztály érintett.

A vízminták rádiumtartalma által okozott sugárterhelés becslése során $2,8 \times 10^{-7}$ Sv/Bq, radontartalom esetén 4×10^{-9} Sv/Bq egészségre vonatkozó dóziskonverziós faktorokkal számoltam. A felnőttek éves folyadékfogyasztását, az UNSCEAR 2000-es riportja alapján 500 literrel vettem figyelembe. Ez természetesen szélsőséges esetnek számítana, hogyha valakik a teljes folyadékigényüket ezen gyógyforrások vizéből elégítenék ki. De minden

bizonytal vannak huzamosan ivókúrárt igénybevevők, akikre a számított dózisterhelés, mint maximális érték figyelembe vehető. A IV-7. táblázatban látható a radon és rádium által külön-külön, valamint együttesen okozott éves sugárterhelés. A számolást a II-3. egyenlet alapján végeztem.

IV-7. táblázat. Felnőttek vízfogyasztásból eredő éves effektív dóziszjóruléka

Mintavétel helye	²²² Rn (Bq/l)	²²⁶ Ra (mBq/l)	Éves sugárterhelés (mSv)		
			²²² Rn esetén	²²⁶ Ra esetén	Összesen
Attila	289	834	0,58	0,12	0,70
Juventusz	135	646	0,27	0,090	0,36
Hungária	393	699	0,79	0,098	0,89
IV. ivókút	22	265	0,044	0,037	0,081

A Föld népességét természetes és mesterséges eredetű forrásokból átlagosan 2,8 mSv effektív dózisegyenérték éri. Látható, hogy ezen átlagos értékhez képest a Rudas Ivócsarnokban árusított magas radon- és rádiumtartalmú hévizek fogyasztásából származó sugárterhelés-járulék nem elhanyagolható.

A hazánkban jelenleg érvényben lévő MSZ 62/1-1989 számú szabványban [MSZ 62] a ²²⁶Ra emberi szervezetbe való bekerülésére vonatkozóan az éves felvételi korlát (ÉFEK) értéke a lakosságra 7×10^3 Bq. A fenti hévizek 265-834 mBq/l-ig terjedő ²²⁶Ra tartalmát tekintve és 500 liter/év-es személyenkénti vízfogyasztást feltételezve az éves felvétel ²²⁶Ra-ra 132,5-417 Bq, ami az ÉFEK-nek az 1,9-5,9 %-a.

A kapott eredmények alapján elmondható, hogy az Attila-, a Juventus- és a Hungária-források vizét rendszeresen fogyasztóknak ezen vizek radon- és rádiumtartalma által külön-külön okozott sugárterhelése szinte minden esetben, míg az együttesen okozott sugárterhelés minden esetben sokszorosan meghaladja a WHO ivóvizek fogyasztására vonatkozó ajánlásának 0,1 mSv-es értékét.

Meg kell jegyeznünk azonban, hogy a II.1.4 alfejezetben hivatkozott, 1993-as WHO ajánlás nem tér ki az ivóvizek radontartalmára. Ez azzal indokolható, hogy szállítás, háztartási felhasználás (főzés, zuhanyzás, stb.) közben az ivóvíz eredeti radontartalma csökken. A vízben lévő radon nagyrésze használat közben a légtérbe jut, így megnő a radon belégzésének jelentősége. A mindennapi élet során a lenyelésből származó terhelés általában alacsony a belégzésből eredő dózishoz képest. Arányuk azonban nagymértékben függ a lakások tervezésétől, és az életmódbeli sajátosságoktól. Ezért a WHO szerint nincs értelme a háztartásban felhasznált víz radontartalmára a légtérre vonatkozó korlátoktól független korlátozást bevezetni.

Az ICRP 65 kiadványa szerint [ICRP-65] 200–600 Bq/m³ radonkoncentrációjú lakásban élni 3–10 mSv éves effektív dózisterhelést jelent. Ehhez képest a magas

radon- és rádiumtartalmú vizek fogyasztásából származtatott, rendkívül felülbecsült 0,37-0,89 mSv effektív dózisterhelés kisebb jelentőségű.

Az itt bemutatott hévizek fogyasztása során a radontartalom által okozott sugárterhelés felülbecsült és arra az esetre vonatkozik, ha a vizek elfogyasztása az Ivócsarnokban megtörténik. Ugyanis szállítás, tárolás, pohárba töltés, esetleg melegítés során csökken a vizek radontartalma, így a lenyelést követően okozott sugárterhelés is.

IV.3 HAZAI PALACKOZOTT ÁSVÁNYVIZEK RÁDIUMTARTALMA

A palackozott ásványvizek fogyasztása világviszonylatban egyre népszerűbb. Ennek oka lehet az egészséges életmódra való törekvés, de egyre inkább jellemző a megfelelő minőségű ivóvíz hiánya, főleg a nagymértékben iparosodott nyugat-európai és az évtizedek óta nagyfokú karsztvíz kitermelést végző mediterrán országokban. Az utóbbi években hazánkban is megfigyelhető az egy főre eső évi ásványvíz-fogyasztás jelentős növekedése. A növekedés az 1990-es évek elején kezdődött, a privatizálás hatására beindult beruházások és fejlesztések eredményeként. Míg az 1980-as évek végéig egy átlagos magyar évente megközelítőleg csak 2,5-3 liter ásványvizet ivott, addig 1993-ban már 6,5 litert, 1999-ben 28 litert, 2000-ben pedig a fogyasztás megközelítette a 40 literes átlagot. Ez ugyan még elmarad a 80 literes osztrák, a 100 literes német vagy a nagy ásványvíz-fogyasztó franciák és olaszok 120-130 literes átlagfogyasztásától. Azonban optimista becslések szerint hamar behozzuk a lemaradást, mert ilyen tendenciájú növekedést tartva két-három év elteltével fejenként évi 60-70 literes fogyasztásra lehet számítani [Mi-00], [Bo-95]. Egyes elemzések szerint a magyarországi felnőtt lakosság (20-59 évesek) kb. 18%-a naponta fogyaszt ásványvizet, s így ők mondhatók Magyarországon a legnagyobb ásványvíz-fogyasztóknak [Zs-98].

Magyarországon jelenleg közel 80 kút szolgáltat elismert ásványvizet, melyek közül 21 vizét palackozzák. A természetes ásványvizek különböző vízáradó rétegekből és mélységekből erednek, ezért ásványianyag- és természetes radionuklid-tartalmuk tág határok között változik.

Munkánk során a kereskedelmi forgalomban kapható, palackozott ásványvizek kb. felének rádiumtartalmát vizsgáltuk radonmonitoros módszerrel. Egyes minták rádiumtartalmát független mérés során Dezső Zoltán is meghatározta radiokémiai gamma-spektrometriai módszerrel. A kapott eredmények, a vízáradó réteg földrajzi helyzete, valamint kora a IV-8. táblázatban láthatók.

Meg kell jegyeznünk, hogy az Aqua-friss mátrai forrásvízből készült ivóvíz, míg a Bonaqua sókeverékek feloldásával készített nem természetes ásványvíz.

A szén-dioxiddal különböző mértékben dúsított ásványvizek rádium aktivitáskoncentrációjában szignifikáns eltérést nem tapasztaltunk, így ezeket nem tekintettük különböző fajtának az eredmények feltüntetésénél.

IV-8. táblázat. Palackozott ásványvizek ^{226}Ra -tartalma [mBq/l]

Márka név	Vízadó réteg földrajzi helyzete	A vízadó réteg kora	²²⁶ Ra gamma-spektr.	²²⁶ Ra Radamon
Bonaqua	Dunaharaszti	-	-	5±2
Aqua-friss	Parádsasvár környéke	-	-	8±2
Szentkirályi Ásványvíz	Lakitelek	felső pannon	13	7±2
Mineralis 305	Lakitelek	-	-	8±2
Parádi Ásványvíz	Parádsasvár, Csevice II.	felső oligocén, felső pannon	27	10±2
Pannon Aqua	Csány, Mátra hegység "lábánál"	felső pannon	13	12±2
Borsodi ásványvíz	Sajószentpéter		-	19±3
Balfi ásványvíz	Balf	miocén, bádeni mészkő	85	-
Theodora Quelle	Kékkút, Balaton-felvidéki Nemzeti Park	alsó triász mészkő	77	64±7
Óbudai Gyémánt	Óbuda	felső triász, Dachstein mészkő	110	111±11
Visegrádi Ásványvíz	Visegrád-Lepencevölgy	fő dolomit	204	186±18
Margitszigeti Kristályvíz	Margitsziget, Magda II. forrás	felső eocén mészkő	518	451±42
Gellérthegyi Kristályvíz	Rudas Fürdő, Juventusz forrás	felső triász, fő dolomit	704	1135±104
Apenta				
Dús	Órmező,	felső triász,	2780	2865±264
Enyhe	Budapest	törmelékes földolomit	2890	2911±268

A vizsgált palackozott ásványvizek többségének a rádiumtartalma alacsony értéket mutat. A vizek rádium aktivitáskoncentrációja jól elkülöníthető a vízadóréteg kora szerint. A triász kori dolomitból és mészkőből felszínre hozott ásványvizek nagy részének a rádiumtartalma magasabb, míg a felső pannon kori és más újkori üledékekben tárolt ásványvizeké alacsonyabb értéket mutat.

A különböző módszerekkel kapott eredmények elég jó egyezést mutatnak. Alacsony rádium aktivitáskoncentráció esetén a maratottnyom-detektoros módszerrel kapott eredmények kisebbek a gamma-spektrometriás módszerrel kapottaknál. Ezt magyarázhatjuk a Radamon érzékenységének csökkenésével, amit a mintában maradt szén-dioxid okozhatott.

A nemzetközi irodalmi adatokkal összehasonlítva (II-5. táblázat) a hazai palackozott ásványvizek rádiumtartalma átlagosnak mondható és összemérhető a görög, francia és osztrák palackozott ásványvizekével. A triász kori víztároló rétegekből kitermelt vizek magasabb rádiumtartalma összemérhető a spanyol ásványvizek 60-1860 mBq/l-es tartományba eső rádium aktivitáskoncentrációjával.

IV-9. táblázat. A vizsgált ásványvizek főbb oldott szilárd alkotórészei (mg/l), a kutak talpmélysége és hőmérséklete

Márka név	Hőm. (°C)	Talp m. (m)	Mg ²⁺	Ca ²⁺	SO ₄ ²⁻	Összes oldott ásványianyag	²²⁶ Ra [mBq/l]
Szentkirályi Ásványvíz	18	206	26	63	-	575	7
Mineralis 305	26,9	305	3,9	10,7	25	1485	8
Parádi Ásványvíz	-	-	66	187	144	1463	10
Pannon Aqua	17	103	32,9	57	-	653	12
Borsodi ásványvíz	20,4	262	79	255	890	5282	19
Balfi	14,5	34,6		229	-	2080	
Theodora Quelle	12,6	18	75	264	42	1410	64
Óbudai Gyémánt	21	444,7	47	91	84	687	111
Visegrádi Ásványvíz	39	1302	62	163	121	12971	186
Margitszigeti Kristályvíz	68	310	40,8	154	168	13701	451
Gellérthegy Kristályvíz	39,5	43,5	69	169	332	1385	1135
Apenta							
Dús	61	997	55	197	440	1853	2865
Enyhe							2911

A vizsgált ásványvizek főbb és összes oldott ásványianyag-tartalmát, a kutak talpmélységét és hőmérsékletét tartalmazza a IV-9. táblázat. Próbáltunk kapcsolatot keresni ezen jellemző paraméterek és a vizek mért rádiumtartalma között.

A vizsgált ásványvizek főbb összetevőit összevetve a minták rádiumtartalmával nem tapasztaltunk összefüggést egyetlen esetben sem az egyes komponensek és a rádium aktivitáskoncentrációk között. Még a kalcium esetében

sem, holott köztudott, hogy a rádium helyettesítheti a kalciumot annak vegyületeiben.

Általánosságban elmondható, hogy a magasabb hőmérsékletű vizek rádiumtartalma is magasabb. A mi méréseink is igazolják ezt a megfigyelést, melyszerint a termálvizeknek (Apenta, Gellérthegyi Kristályvíz, Margitszigeti, stb.) magasabb a rádiumtartalma, mint a többinek, mivel a melegebb vizek több rádiumsót tudnak kioldani azokból a kőzetekből, amelyekkel érintkeznek.

IV.3.1 Sugáregészségügyi értékelés

A vizsgált palackozott ásványvizek kereskedelmi forgalomban kapható, mindenki számára elérhető termékek. Nagy többségüket a lakosság nemcsak üdítő italként, hanem ivóvízként is fogyasztja. A 100 mBq/l-t meghaladó rádiumtartalmú ásványvizek fogyasztása esetén, évi 500 literes fogyasztást feltételezve [UN-00], éves sugárterhelést számoltunk a II. fejezetben megadott dóziskonverziós tényezők felhasználásával, különböző korcsoportokra [NAÜ-96]. Az eredmények a IV-10. ábrában láthatók.

IV-10. táblázat Évi 500 liter ásványvíz fogyasztása esetén különböző korcsoportoknál fellépő éves effektív dózis

Ásványvíz	²²⁶ Ra (mBq/l)	Éves sugárterhelés (mSv)			
		Korcsoportonként			
		2-7 év	7-12 év	12-17 év	Felnőtt
Óbudai Gyémánt	111	0,034	0,044	0,083	0,016
Visegrádi Ásványvíz	186	0,042	0,074	0,139	0,026
Margitszigeti Kristályvíz	451	0,139	0,18	0,338	0,063
Gellérthegyi Kristályvíz	1135	0,352	0,454	0,835	0,159
Apenta	2865	0,888	1,146	2,214	0,401

A kapott eredményekből látható, hogy napi 1,37 liter ásványvízfogyasztást figyelembe véve, ami a lakosság nagy részére nézve egy felül becsült fogyasztás, a Margitszigeti, a Gellérthegyi Kristályvíz és az Apenta esetén szinte minden korosztály esetén a WHO ajánlás szerinti 0,1 mSv-es értéket meghaladó effektív sugárterhelést kapunk. Különösen a 7-12 és 12-17 éves korosztály esetén kapunk kiugró értékeket. Ha az ásványvíz fogyasztása nem is jellemző a 17 év alatti korosztályokra, üdítőitalokat viszont rendszeresen fogyasztanak, melyek egy részét ezen ásványvizek felhasználásával készítik. A lakosság természetes

forrásokból eredő átlagos évi sugárterhelése 2,4 mSv-nek becsülhető, így ezen víz fogyasztásából származó sugárterhelés jelentős növekedést eredményez.

A vizsgált ásványvizek közül az Apenta nem felel meg a palackozott vizekre is vonatkozó WHO ajánlásnak kiemelekdően magas rádiumtartalma miatt.

Itt szeretném megemlíteni, hogy 2001 júniusában megismételtük frissen vásárolt Apenta termékek rádiumtartalmának vizsgálatát. A méréseink során kapott rádium aktivitáskoncentráció értéke 32 mBq/l volt, ami a hazai ivóvizek rádiumtartalmának megfelelő tartományba esik. Mint később megtudtuk az Apentát forgalmazó, teljes mértékben német tulajdonban lévő vállalat 2001-ben rádium mentesítési eljárást vezetett be az Apenta palackozása során, ezen termék magas rádiumtartalmára vonatkozó visszajelzések hatására.

IV.4 A MÓRÁGYI-RÖGÖN GYŰJTÖTT IVÓVIZEK RADONTARTALMA

A Mecsek délkeleti peremén lévő Mórággyi-rögön elhelyezkedő Szebény, Feked és Véménd faluk ivóvíz ellátását szolgáltató kutak és vízművek radontartalmát mi is vizsgáltuk 1999-ben. Az ottani önkormányzati szervek egy szélesebb körű felmérést végeztek akkor.

A Mórággyi-rög központi övezetét durvaszemcsésű, ún. porfíros gránit alkotja (itt "terül el" Feked), melyet délkeletről illetve északnyugatról finomabb szerkezetű biotitban gazdag gránitszerű kőzetekből álló zóna szegélyez (Véménd, Szebény). Különböző radioaktív kormeghatározási módszerekkel egyértelművé vált, hogy a Mórággyi-rögöt alkotó gránitos kőzetek döntő gránitosodása és metamorfózisa egyaránt a karbon időszakban (kb. 350 millió évvel ezelőtt) következett be.

A minták radontartalmát a már leírt módon határoztuk meg. A minták lezárása a helyszínen történt és az expozíciókat 14 napig, 5-6°C-on végeztük hűtőszekrényben. A vízmintákra kapott mérési eredményeket a IV-11. táblázat tartalmazza.

A II. fejezetben bemutatott, az OSSKI munkatársai által végzett felmérés szerint a hazai ivóvizek radontartalma a legtöbb esetben 0,31-9,33 Bq/l közé esett, míg pl. Pécsvárad ivóvizében 28,13 Bq/l radontartalmat mértek, ugyanakkor az urán- és rádiumtartalom is nagyobb volt az átlagosnál [Sz-99]. Pécsvárad a Mórággyi-rög nyugati oldalán található és a szerzők is az uránban gazdagabb ásványi környezettel magyarázták ezt az anomáliát. Az általunk vizsgált vízművek és kutak közvetlenül a lakosság ivóvíz ellátását szolgálják. Kapott eredményeinket összehasonlítva a hazai ivóvizek radontartalmával megállapítható, hogy a vizsgált véméndi, szebényi és fekedei minták, ivóvizek magas, egyes esetekben kiugróan magas radontartalmúak. Ismereteink szerint az önkormányzati szervek, még abban az évben, egyes kutakat lezártak és korlátozták a vízfogyasztást.

A vizsgált vízminták magas radontartalma azzal magyarázható, hogy a "sekély" kutakat a Mórággyi-rög gránit tömbjébe fúrták. A gránit közismerten

magas urántartalmához feltehetően nagy repedezettség is társul és ez okozza a felszínközeli vizeknél szokatlanul magas radontartalmat.

IV-11. táblázat. Fekedi, véméni és szebényi kutak ^{222}Rn -tartalma

Mintavétel helye	^{222}Rn aktivitáskoncentráció (Bq/l)
Feked	
Vízmű	244±16
Vízmű átemelő	237±15
Alsó közkút	173± 10
Felső közkút	59± 4
Közkút (Könyvtárnál)	35± 3
Véménd	
Általános iskola	96± 6
Közkút	44± 3
Sajtüzem	44± 3
Szebény	
Régi víztározó	94± 6
Közkút	69± 4
Vízmű	24± 2

Természetesen a vízminták rádiumtartalmát is meg szeretttük volna mérni, és kigázosítás után elindítottuk a rádium meghatározását célzó expozíciókat is. A kiugróan nagy oldott radontartalom töredék része a mintában maradt és ez a rádiumtartalom durva felülbecsléséhez vezetett, így ezeket az eredményeket nem fogadtuk el.

Dezső Zoltán gamma-spektrometriás mérése szerint ezen ivóvizek rádiumtartalma alacsony, ami nem meglepő, minthogy ezek sekély kutak. A leszivárgott csapadékvíz nem tölt sok időt a felszín alatt, a hőmérséklete is alacsony így rádiumban nem tud feldúsulni.

Mivel ezek a vizek a lakosság által fogyasztott ivóvizek, ezért megbecsültem a fogyasztásukból származó sugárterhelést. A vízminták radontartalma által okozott sugárterhelés becslése során 4×10^{-9} Sv/Bq egésztestre vonatkozó dóziskonverziós faktorról és évi 500 literes vízfogyasztással számoltam. A kapott eredmények a IV-12. táblázatban láthatók.

A vizsgált ivóvizek fogyasztása által okozott éves sugárterhelés szinte minden esetben meghaladja a WHO ajánlásban szereplő 0,1 mSv értéket, ami ezen

minták esetén különös figyelmet érdemel, mivel mindennapi vízigény kielégítését szolgálják.

IV-12. táblázat. Fekedi, véméndi és szebényi kutak ^{222}Rn -tartalma által okozott éves sugárterhelés

Mintavétel helye	^{222}Rn (Bq/l)	Éves sugárterhelés (mSv)
Feked		
Alsó közkút	173	0,346
Felső közkút	59	0,118
Könyvtárnál lévő közkút	35	0,070
Véménd		
Általános Iskola	96	0,192
Közkút	44	0,088
Szebény		
Közkút	69	0,138

IV.5 HARGITA-MEGYEI ÁSVÁNYVIZEK RÁDIUMTARTALMA

Hargita-megye, Kovászna megyével együtt Románia egyik leggazdagabb területe szénsavas ásványvíz- és száraz gázfeltörésekben. Legismertebbek a tusnádi és borszéki szén-dioxiddal telített ásványvizek, azonban a helyi lakosság által igen kedveltek a Csíki- és Gyergyói-medencén végigfutó regionális törésvonal mentén feltörő ásványvizek is. Ezek a többnyire szénsavas ásványvíz feltörések a Keleti-Kárpátok központi kristályos övezete mögött elhelyezkedő neogén vulkanikus vonulatok (Hargita-hegység, Kelemen-havasok) "benyomulásának" utóvulkanikus megnyilvánulásai.

A megye ásványvizeinek radioaktivitását már korábban is vizsgálták, azonban rádiumtartalmukra vonatkozóan igen kevés és hiányos adat áll rendelkezésre. Az OTKA 22985 kutatási szerződés keretében, Mócsy Ildikóval a Kolozsvári Népegészségügyi Intézet kutatójával együttműködve lehetőségünk nyílt (1998-99)-ben, hogy tanulmányozzuk a megye területén fakadó borvizek rádiumtartalmát.

A források kiválasztása annak alapján történt, hogy azok a helyi lakosság által széles körben fogyasztott borvizek, forrásvizek vagy ivókúrát és fürdőket ellátó ásványvizek legyenek. A vizsgált ásványvizek egy része palackozva is

forgalomba kerül (pl. borszéki, zsögödi). A vizsgált források, kutak lelőhelyei a Függelékben a 4. ábrán láthatóak.

A vízmintákat a Csíkszeredai Környezetvédelmi Ügynökség és a Hargita-megyei Egészségügyi Főfelügyelőség és Egészségvédelmi Központ munkatársainak segítségével gyűjtöttük 1998-ban, sósavval átmosott 2 literes illetve 1.5 literes műanyag flakonokba. A minták a természetes feltörés helyszínéről, ha volt kialakított kút akkor abból kerültek mintázásra. A vízminták pH-ját még a helyszínen 2-3-as értékre állítottuk be cc. HNO₃ hozzáadásával.

A vízminták rádiumtartalmát radonmonitoros módszerrel határoztuk meg. A kapott mérési eredményeket a IV-13. és a IV-13a. táblázat tartalmazza. Oldott radontartalomra vonatkozó méréseket nem végeztünk, főleg ezen vizek nagy kötött szén-dioxid tartalma miatt. Más radon mérési technikával viszont nem rendelkezünk.

Az ásványvizek rádiumtartalma jól elkülöníthető a II. fejezetben bemutatott vízádórétegek és fő törésvonalak szerint ezért a táblázatban már ennek megfelelően csoportosítva láthatók.

IV-13. táblázat. A erdélyi vízminták rádiumtartalmának mérési eredményei

Mintavétel helye	²²⁶ Ra (mBq/l)
Csíki-, Gyergyói-medence és Hargita-hegység keleti oldala	
Maroshévíz (Bánffy-forrás)	17±4
Gyergyóremete (fürdő)	14±3
Madicsafürdő (patakából)	19±5
Madicsafürdő (borvíz-fürdő)	29±6
Csíkmadaras	17±4
Csíkdánfalva (Dugás-fürdő)	36±6
Csíkrákos	49±7
Csíksomlyó	50±7
Zsögöd	< 10
Csíkszentkirály (Hargita-forrás)	14±5
Csíkszentkirály (Borsáros)	20±5
Csíkcساتószeg	18±5
Tusnádfalu	32±6
Csíki-medencei vasútnál	42±7
Hargitafürdő	89±11
Borszék	
1. forrás (palackozott)	34±5

5. forrás	149±15
4. forrás (palackozott)	177±18
6. forrás	191±19
10. sz. Kossuth-forrás	216±21
3. forrás	334±32
IV-13a. táblázat. A erdélyi vízminták rádiumtartalmának mérési eredményei (folytatás)	
Mintavétel helye	²²⁶ Ra (mBq/l)
Tusnádfürdő	
4. forrás	67±9
3. forrás	152±17
1. forrás	267±28
„Veresvíz”	364±37
Ilona-fürdő	703±70
Hargita-hegység nyugati oldala	
Kiruj	< 10
Szeltersz	10±3
Szejke	35±5
Kovard	< 10
Homoródfürdő	< 10
Szentegyháza (kórház)	< 10
Szentegyháza 2.	75±8
Árcsó jobb oldali forrás	21±4
Árcsó bal oldali forrás	16±3
Homoród (Lobogó-forrás)	26±6

A mérések alapján elmondható, hogy a vizsgált ásványvízforrások nagyrésze mérsékelt rádiumtartalmú, aktivitásuk általában 90 mBq/l alatt marad, néhány vízminta esetében a kimutathatósági határ közelében lévő. A borszéki és tusnádfürdői források nagy részénél a mért aktivitáskoncentrációk lényegesen magasabbak, értékük 150-700 mBq/l közé esik. A források nagy részét a 30-50 méter mélységig leszivárgó csapadékvíz táplálja. A vizek érintkezve a kőzetekkel oldják a bennük lévő sókat, gázokat és mint ásványvizek kerülnek újra a felszínre. Mivel felszín közeli vizekről van szó, ezért a vizek hőmérséklete

alacsony, földalatti útja viszonylag rövid, így a víz és a kőzetek érintkezési ideje is rövid ezért általában kevés ásványi anyagot tartalmaznak.

A borszéki és tusnádfürdői források kristályos palákban található dolomit rétegekből vagy fillit tartalmú kőzetekből erednek, ez magyarázza az előzőekhez képest magasabb rádiumaktivitást. A Borszéki-medence peremét kristályos palák (melyek széles dolomitos, kristályos mészkő sávokat tartalmaznak), kristályos mészkövek és andezites aglomerátok képezik. Míg a medence belsejében pliocén márgás-homokkőves lerakódások, valamint negyedkori üledékek (mésztufák) találhatóak. Tusnádfürdő fürdőterületén hasznosított források piroklasztikus eredetű kavicsokban és homokban keringő ásványvizek. Ez a vízréteg érintkezik egyes övezetekben a kréta flis képződményeivel. Erre utal az Ilona forrás sós jellege is. A flis tengeri eredetű homokkő, márga, palás agyag és mészkő váltakozó településben.

A Csiki-, Gyergyói- medencék földtani szempontból utótektonikus besüllyedésnek tekinthetők, melyek mélyedéseit fiatal pliocén és negyedkori lerakódások töltik fel. Az ezekből valamint a Hargita-hegység andezit rétegeiből fakadó forrásoknak a rádiumtartalma alacsonyabb.

IV.5.1 Sugáregészségügyi értékelés

A vizsgált vizek egy része palackozva kerül kereskedelmi forgalomba, nagy többségüket pedig a helyi lakosok ivóvízként fogyasztják. A fogyasztási szokások felmérése szerint a lakosság átlagosan 0,5 liter borvizet fogyaszt naponta. A borvíz fogyasztása során a szervezetbe bevitt rádium által okozott sugárterhelés becsléséhez a vizsgált borvizeket aktivitáskoncentrációjuk szerint a IV-14. táblázatban látható hat csoportba osztottuk.

A 10 mBq/l-nél nagyobb rádiumtartalmú ásványvizek esetén, napi 0,5 literes fogyasztást figyelembe véve, éves sugárterhelést számoltunk. Számolásunkat a II-3. egyenlet alapján, a II. fejezetben megadott dóziskonverziós tényezők felhasználásával, különböző korcsoportokra, a fenti táblázatban megadott átlagos aktivitáskoncentrációk alapján végeztük [NAÜ-96]. Az eredmények a IV-15. ábrában láthatók.

IV-14. táblázat. Hargitai borvizek ²²⁶Ra-tartalmuk szerinti csoportosítása

Csoport	²²⁶ Ra koncentráció (mBq/l)	Ásványvíz források száma	²²⁶ Ra-koncentráció átlaga (mBq/l)
1	<10	5	<10
2	10-50	19	26
3	50-100	3	77
4	100-200	4	167
5	200-500	4	272

A kapott eredményekből látható, hogy napi 0,5 liter borvízfogyasztást figyelembe véve csak a 703 mBq/l aktivitáskonzentrációjú borvíz esetén várható a WHO ajánlás szerinti 0,1 mSv-es értéket meghaladó érték a 7-12 és 12-17 éves korcsoportoknál. A lakosság természetes forrásokból eredő átlagos évi sugárterhelése 2,4 mSv-nek becsülhető, így ezen víz fogyasztásából származó sugárterhelés 4-8%-os növekedést eredményez. Igaz ez csak a ^{226}Ra -tól származik, amelyhez még más radionuklidok, mint pl. ^{222}Rn , ^{228}Ra , ^{238}U , stb is hozzáadódnak.

IV-15. táblázat Napi 0,5 liter borvíz fogyasztásakor a különböző korcsoportoknál fellépő éves effektív dózis

Csoport	^{226}Ra átlag (mBq/l)	Éves sugárterhelés (mSv)			
		Korcsoportonként			
		2-7 év	7-12 év	12-17 év	Felnőtt
2	26	0,003	0,004	0,007	0,001
3	77	0,009	0,011	0,021	0,004
4	167	0,019	0,024	0,046	0,009
5	272	0,031	0,039	0,075	0,014
6	703	0,079	0,103	0,192	0,036

Számolásaink és méréseink alapján megállapítható, hogy a vizsgált Hargita-megyei borvizek fogyasztása a rádiumtartalom alapján nem kifogásolható, kivéve a borszéki Ilona fürdő forrását, melynek fogyasztása a 7-12 éves gyerekek sugárterhelése szempontjából korlátozandó lenne.

IV.6 SZLOVÉNIAI ÁSVÁNYVIZEK RADON- ÉS RÁDIUMTARTALMA

Egy 1997-98-as magyar-szlovén TÉT együttműködés keretében az OSSKI és az Atomki kutatói a ljubljanaei Jožef Stefan Intézet munkatársaival gyógyfürdők radioaktivitását vizsgálták. Így került sor ezekben az években egyes szlovén gyógyfürdőket tápláló hévizekből és palackozásra is kerülő ásványvizekből való vízminták begyűjtésére. Ezek radon- és rádiumtartalmát maratottnyom-detektoros technikával én határoztam meg. A IV-16. táblázatban geológiai összefüggések és elemzések nélkül az összehasonlítás kedvéért mutatom be a kapott eredményeket.

IV-16. táblázat. ^{222}Rn és ^{226}Ra aktivitáskoncentrációk Radenskai ásványvizekben (Szlovénia)

Mintavétel helye	^{222}Rn (mBq/l)	^{226}Ra (mBq/l)
Radenska		
Kraljevi Vrelec	–	130±15
Vrelec Miral	–	11±3
Izvir		15±3
Kranjska Gora	430±50	98±8
Mineral Water	1350±110	210±22
Spring Water	530±60	140±16
Soca River	8530±460	110±11

A Radenskai ásványvizek radon és rádium aktivitáskoncentrációja is a Magyarországon illetve Erdélyben tapasztalt tartományba esik. A vizsgált vizek közül a Soca River kiugró radontartalmát a közeli uránbánya és elődúsító létesítményeinek a közelsége indokolja.

V ÖSSZEFOGLALÁS

A mélyben lévő zavartalan vízbázisok minden ország megbecsült természeti kincsei. A hévizek és ásványvizek vizek több nagyságrendnyi tartományban változó radioaktivitása döntően a geológiai környezetben felvett radontól és rádiumtól ered. Ezen alfa-radioaktivitást hordozó elemek egyrészt nyomjelzői a mélységi vizek transzportfolyamatainak, másrészt a lakossági sugárterhelés egyik fontos összetevőjét képezik a kiemelkedő aktivitású vizek felhasználóinak körében.

Dolgozatomban, a MTA Atommagkutató Intézetének Radon Csoportjában, vízminták ^{222}Rn - és ^{226}Ra -tartalmának meghatározására szolgáló maratottonyom-detektoros módszer meghatározó hozzájárulással végzett fejlesztésének eredményeiről számoltam be, valamint bemutattam a módszer alkalmazása során kapott hazai és külföldi felszínalatti vízminták radon- és rádiumtartalom meghatározásának és a fogyasztásuk által okozott járulékos sugárterhelés becslésének eredményeit. Tudományos munkám során kapott eredmények az alábbi pontokban foglalhatók össze:

1. Elméletileg meghatároztam és kísérletileg is igazoltam, hogy a vízminták radon- és rádiumtartalmának meghatározására szolgáló maratottonyom-detektoros mérési eljárás érzékenysége függ a vízminták mérési időtartam alatti hőmérsékletétől, és az érzékenység hőmérsékletfüggése jól követi a radon gáz irodalomból ismert víz- és levegőfázis közötti megoszlási tényező (Ostwald-tényező) reciprokának hőmérsékletfüggését [1, 2].
2. Elméletileg és kísérletileg is meghatároztam a vízminták radon- és rádiumtartalmának meghatározására szolgáló maratottonyom-detektoros módszer érzékenységének a vízminta térfogatától való függését. Megállapítottam, hogy méréseink szempontjából az általunk használt 0,72 dm³-es térfogat (a kereskedelmi forgalomban olcsón beszerezhető "beföttes üveg" térfogata) optimálisnak tekinthető, ugyanis a vízminta térfogatának további növelése már nem jár jelentős érzékenység-növekedéssel, azonban a térfogat csökkentése esetén az érzékenység gyorsan csökken [2, 3].
3. A vízminták radon- és rádiumtartalmának meghatározására szolgáló maratottonyom-detektoros módszer esetén a radon gáz vízben való diffúzióját is tekintetbe véve elméletileg és kísérletileg is meghatároztam a nyomdetektoron mérhető nyomsűrűséget a besugárzási idő függvényében. A "nyomsűrűség-besugárzási idő"-görbe alakja, a radon gáz vízben való effektív diffúziós együtthatóján keresztül függ a radonmonitorral "kölcönható" víztérfogat nagyságától. Az elméleti és a kísérleti adatok összevetéséből arra a következtetésre jutottam, hogy a vízmintában a víz

természetes keveredése a besugárzási idő alatt elegendően nagy ahhoz, hogy a radonmonitor a teljes víztérfogatot érzékelje [1, 2].

4. Egy új mérési módszer kifejlesztése során kézenfekvő annak összevetése már ismert, a gyakorlatban alkalmazott és jól bevált technikákkal. Esetünkben egy olyan módszer kifejlesztésére vállalkoztunk, amely már létező, azonban néha meglehetősen drága, vagy kisszámú mérés elvégzésére alkalmas módszerek hasznos kiegészítője lehet. A kifejlesztett maratottnyom-detektoros mérési eredményeinket Dezső Zoltán által, a Debreceni Egyetemen kidolgozott és alkalmazott gamma-spektrometriai és Szerbin Pável által az OSSKI-ban kifejlesztett radon emanációs módszerekkel mért eredményekkel hasonlítottuk össze. Az azonos minták e három módszerrel történő analiziséből adódó eredmények jó egyezése a maratottnyom-detektoros radonmonitoros módszer megbízhatóságát igazolja [1, 6].
5. Budapesti gyógyfürdőkben, 1998-ban gyűjtött, s ott fürdő- és ivókúrákhoz használt hévizek radon- és rádiumtartalom mérését végeztem el. A jelen mérésekből új, nagyobb pontosságú adatokat kaptam 13 Duna menti forrásra. Megállapítható, hogy a radon- és rádiumtartalom jellemzően különbözik a budai oldalon geológiai és vízkémiai szempontból definiált forráscsoportokra. A ^{222}Rn aktivitáskoncentráció eredmények a Gellért-hegyi forráscsoport esetén 47-393 Bq/l, míg a József-hegyi forráscsoport esetén 18-65 Bq/l. A mért ^{226}Ra értékek a Gellért-hegyi forráscsoportnál 626-837 mBq/l szűk tartományba estek, a József-hegyi forráscsoportnál 48-265 mBq/l tartományban egymástól nagyobb mértékben eltértek. A talpmélység, hőmérséklet, oldott ásványianyag-tartalom, illetve a radon- és rádiumtartalom vizsgálatából a vizek összetételére és forrásaiknak, valamint a felszínre bukkanásukig megtett útjuk geológiai környezetére vonatkozó kapcsolatokat tártunk fel. Továbbá ivókúrában használt források méréséből kapott eredményeket dozimetriai szempontból értékeltük, s azt találtuk, hogy a Rudas Ivócsarnokban árult Attila-, Juventusz- és Hungária-források magas radon- és rádiumtartalmú vizét sem a lakosság körében, sem gyógyterápia során nem ajánlott korlátlanul fogyasztani [6].
6. A kifejlesztett maratottnyom-detektoros módszer segítségével Hargita-megyei borvizek rádiumtartalmát vizsgálatuk. A minták gyűjtése 1998-99-ben történt a Csíkszeredai Környezetvédelmi Ügynökség és a Hargita-megyei Egészségügyi Főfelügyelőség és Egészségügyi Központ közreműködésével. Ennek során eddig nem ismert, új adatokat határoztam meg 36, a Csíki-medencében gyűjtött vízminta esetén, amelyeket az ott élő lakosság széles körben, naponta használ. A 10–703 mBq/l tartományba eső mérési adataimra támaszkodóan dozimetriai becslés készült a borvizek fogyasztásából eredő lekötött effektív dóziszra, amely felnőttekre 0,001-0,036

mSv/év, 2-17 éves gyerekekre pedig 0,003-0,192 mSv/év a borvizek rádiumtartalmától függően [4, 5].

7. A kereskedelemben egyre nagyobb számban és változatosságban megjelenő palackozott ásványvizek jóvoltából egyre több ásványvizet iszunk. Az európai átlagfogyasztás 120-130 liter/ év/ fő, de a 2-3 évente duplázódó magyarországi fogyasztás is elérte a 40 liter/év/ fő értéket 2000-ben. Ezért egyre indokoltabbá válik ezen ásványvizek, a fogyasztóra gyakorolt hatások szempontjából való felülvizsgálata is. Lényeges vizsgálati szempont a vizek, belső sugárterhelést okozó radioaktivitása, minthogy ennek nagy értéke esetleg az egyéb okokból hasznosnak vélt vizek fogyasztását akár ellenjavallottá is teheti, vagy mentesítési eljárás bevezetését igényli. Maratontnyom-detektoros módszerrel meghatároztam 14, Magyarországon palackozott, kereskedelmi forgalomban kapható ásványvíz rádiumtartalmát. A mérési adatok a kimutathatósági határtól közel 3000 mBq/l értékig terjedtek. Az általam mért új adatokat összehasonlítottuk az időközben, más kutatócsoportok különböző módszerekkel mért adataival is, melyek jó egyezést mutatnak. Érdemes megemlíteni, hogy a fogyasztók érdekeit szem előtt tartva, a különböző módszerekkel, azonos mintákon (azonos márkanevű palackozott ásványvizek) történő mérések sem haszontalanok, ugyanis mint független adatok javítják a mintavételi és mérési statisztikát, valamint növelik az eredmények megbízhatóságát. Hozzájárulnak egy leendő országos felméréshez, amelyre az utóbbi időben a szakemberek és a lakosság körében is igény mutatkozik. Az én méréseim is alátámasztották azt a figyelmeztetést, melynek hatására az Apenta-t forgalmazó külföldi cég az utóbbi időben rádiummentesítési eljárást vezetett be az ásványvíz palackozása során [6].
8. A Mórággyi-rögön létesített vízművek által szolgáltatott ivóvizek radontartalmát vizsgáltam 1999-ben az érintett (Véménd, Szébény, Feked) falvak Polgármesteri Hivatalának felkérésére. A vizek eredete, illetve a vizek által megtett utak geológiai adottsága és a vizek rádiumtartalma közti kapcsolatok feltárása mellett, dozimetriai számításokat is végeztem az elfogyasztott "vezetékes vizek" fogyasztásából származó sugárterhelés becslésére, melynek értéke 0,07-0,346 mSv/év a vizek radontartalmától függően. Valószínűleg az én méréseim is, mint független adatok, hozzájárultak a legnagyobb radontartalmat [173 Bq/l] mutató fekedei "alsó" közkút e vizsgálatokat követő lezárásához [4].

VI SUMMARY OF THE THESIS

"Radon and radium content of thermal and mineral waters"

Introduction

Radioactivity of thermal and mineral waters, which may vary over several orders of magnitude, is mainly due to the radon and radium originating from the geological environment. Radon and radium content of waters may be interesting from different points of view. Firstly, waters with high activity may contribute significantly to the public radiation exposures. Secondly, radon and radium can be useful in tracing underground water transport.

From the public health point of view, the investigation of the radon and radium content of drinking and mineral waters and the estimation of their contribution to the radiation exposure are our current tasks nowadays. People have had an increasing interest in the consumption of bottled mineral waters due to the worldwide decrease of good quality drinking waters. The consumption of mineral waters is significantly increasing from year to year in Europe and in Hungary, as well. Both drinking and natural mineral waters originate from different aquifers, situated at different depths below the surface. Thus, they represent a wide variety of mineral and radionuclide content, and sometimes extremely high values can also be observed. The daily consumption of mineral waters with high ^{226}Ra content and of waters with high ^{222}Rn content may have a significant contribution to the internal natural radiation exposure of the population. For this reason, the permissible activity concentration of radium and radon in drinking waters is limited in numerous countries. However, in Hungary there are no limitations, and even relating measurements of radioactivity of mineral waters were very occasional, and many of them took place only in the last years.

^{222}Rn and ^{226}Ra isotopes can be found in the environment in trace amounts, but due to their radioactivity they are easily measurable. Consequently, they are favourable natural tracers of near-surface and underground water transports. The ^{226}Ra content of natural waters can give information related to their origin, mixing and underground path. Moreover, the ^{226}Ra content of waters flowing from recultivated uranium waste dumps and troughs can indicate directly the state of the covering layer. It is obvious that a simple, low-cost and reliable radium measuring method in permitting a large number of measurements is of great value, because an increasing interest in radioactivity determinations of natural waters can be expected in the very near future.

Aims

The development of an etched track type radon monitor for radon and radium determination in water samples was carried out and completed with my considerable contribution as part of my PhD work at the Radon Group of the Institute of Nuclear Research of the Hungarian Academy of Sciences. After the initial development of this novel method, several problems were revealed, which I could solve. I studied and determined the applicability conditions and played an important role in making the method quantitative.

In the frame of two OTKA projects ("Radium determination in sub-surface waters", T 022985 and " ^{222}Rn and ^{220}Rn isotopes in natural and built environment", T 029306) I made numerous measurement of ^{222}Rn and ^{226}Ra content of different types of water collected occasionally or thematically (i) from thermal wells and springs used for drinking cure and bathing in Budapest, (ii) from drilled wells of drinking waters deepened in the Mórógy granite block, (iii) from thermal and natural mineral waters in Hargitha County, Romania and (iv) from bottled mineral waters commercially available in Hungary. The aim was to get information about the radium and radon concentrations of waters occurring in our environment and to estimate the committed effective doses originating from drinking waters.

Methods

Radium, radon and their decay products can be measured by the detection of either alpha, beta or gamma radiation. In our study, we used etched track radon detectors and, in cooperations, we also applied gamma-spectrometry and radon emanation method.

The etched track method for the determination of radon and radium content developed by us is based on a small volume diffusion type etched track radon monitor, which is tightly enclosed into a gas permeable foil and is immersed into the water sample. Radon from water diffuses through the foil into the internal air volume of the radon monitor, where it exposes an about 1 cm^2 area CR-39 etched track detector. The exposure time is 12-14 days for ^{222}Rn and about 30 days for ^{226}Ra determination at regulated temperature. After exposure the CR-39 detectors were etched in 6.25 mol/dm^3 NaOH solution at 70°C for 5 hours and the alpha tracks were counted manually under an optical microscope. Using consistent equations, deduced from the sensitivity of the method, which was determined both theoretically and experimentally, the unknown activity concentrations of radon and radium can be calculated from the measured track densities.

Results

1. I have determined theoretically and shown with experiments that the sensitivity of radium and radon determination method of water samples by etched track type radon monitor is dependent on the temperature of the water samples during exposure. I have demonstrated that the temperature

dependence of the sensitivity of the method can be explained by the temperature dependence of the invert of the Ostwald partition coefficient of radon between water and air phases [1, 2].

2. I have determined both theoretically and experimentally that the sensitivity of this method is dependent on the volume of the water sample. I have showed that the volume of 0.72 dm³, used in our experiments, is adequate, since increasing the volume of the water sample does not increase significantly this sensitivity. However, by decreasing the volume of the sample, the sensitivity decreases fast [2, 3].
3. Considering the diffusion coefficient of radon in water, I have determined both theoretically and experimentally the track density measurable on the track detector as a function of exposure time. The form of the track density versus exposure time curve depends through the effective diffusion coefficient of the radon gas in water on the amount of water volume, which interacts with the enclosed air volume. Comparing the theoretically calculated curve with the experimental data, I have concluded that the natural mixing of the water is sufficient for the radon monitor to interact with the whole water volume in the glass vessel [1, 2].
4. In the case of a newly developed method it is important to perform intercomparison measurements with other well-known, widely used methods. On the course of such an intercomparison the data obtained by our etched track radon monitor method were compared with the data measured by gamma-spectrometric and radon emanation methods accomplished by Zoltán Dezső at the University of Debrecen and Pével Szerbin at the Institute for Radiobiology and Radiohygieny, Budapest, respectively. The good agreement for ²²²Rn and ²²⁶Ra activity concentration measurement data of the same water samples measured by the above three methods demonstrates the reliability of our etched track radon monitor method [1, 6].
5. I have measured radon and radium content of thermal waters collected in medicinal baths of Budapest in 1998, which are used for drinking cure and bathing. From the recent survey new and more precise data were determined for 13 springs along the "thermal line of Buda", on the right side of the Danube. We have recognised that the radon and radium content is also characteristic of the spring groups defined according to geological location and chemical composition. The measured ²²²Rn and ²²⁶Ra data were in the range of 47-393 Bq/l (²²²Rn) and 646-837 mBq/l (²²⁶Ra) for the Gellért Hill's Spring Group and were in the range of 18-65 Bq/l (²²²Rn) and 46-262 mBq/l (²²⁶Ra) for the József Hill's Spring Group, respectively. I have estimated the committed dose for patients taking regularly drinking cure from the Rudas and Lukács Drinking Halls [6].

6. Using the newly developed etched track radon monitor method, the radium content of naturally occurring mineral waters of Hargitha County was measured. The collection of the samples was carried out in 1998-1999 with the help of the Environmental Protection Agency of Csíkszereda and the Institute of Public Health of Hargitha County. I have determined new data of 36 water samples, which are mostly used as a daily drink by the local population. On the basis of my data, in the range of 10-703 mBq/l, the committed effective dose received from radium of the consumed mineral waters by the public was estimated. It was found, that it is 0.001-0.036 mSv/year in case of adults and 0.003-0.192 mSv/year for 2-17 year old children [4, 5].
7. Nowadays people are drinking more and more mineral water, and this demand is reflected in the wide variety and big amount of bottled mineral waters available in corner shops and supermarkets. The European average consumption is 120-130 litre/year/capita. The Hungarian average consumption doubles in 2-3 years, and reached the value of 40 litre/capita in 2000. Therefore, it seems very reasonable to extend the legislation procedure for the radioactivity content of waters that are to be qualified as natural mineral, medicinal or drinking water. By the etched track detector method I have studied the radium content of 14 bottled natural mineral waters originating from different regions of Hungary. The measured data cover a very wide, three order of magnitude range from 7-10 mBq/l to nearly 3000 mBq/l. It is interesting to note that the mineral waters originating from the Upper Pannonian sedimentary layers in the Great Hungarian Plain have much lower radium content than the thermal waters coming from the deep Triassic-karst (carbonate and dolomite) in the region of Budapest. My data were compared and shown a good agreement with data measured by other researchers using different methods. These data also contribute to a national database concerning the radium content of Hungarian bottled mineral waters. In consequence of a warning note on the high radium content of the mineral water produced by the German owned Apenta Co., the Company has lately introduced a radium removal process to prevent people from high internal doses due to the consumption of this brand [6].
8. Radon activity concentration of drinking waters used in Feked, Véménd and Szébény was investigated in 1999 commissioned by the City Halls of these villages. The drilled wells of the waterworks are situated on the eastern side of the Mecsek Mountain (on the Mórággy granite block). Besides looking for relation between the radium content and the origin of the water as well as the geological environment of the water path, I have calculated the annual committed dose of the inhabitants and I have obtained 0.07-0.346 mSv/year depending on the radon content. These measured data have also contributed to the decision to close the public well of Feked having the highest radon content (173 Bq/l) [4].

VII IRODALOMJEGYZÉK

- [Åk-88]: Åkerblom G., Pettersson B. and Rosén B.: Radon from the ground. Handbook on investigation of the radon situation in areas before building, The Swedish Council for Building Research and the Swedish National Board for Housing, Building and Planning. Report R88: (1988), New revised edition, pp. 1-159 (1990)
- [Åk-96]: Åkerblom G. and Lindgren J.: Mapping of ground water radon potential. IAEA Technical Committee Meeting, Vienna, Austria, (May 1996)
- [Al-76]: Alföldi L., Deák J., Liebe P. és Lorberer Á.: A középhegységi hideg és meleg karsztvíz-készletek összefüggése, különös tekintettel a bányászat víztelenítési törekvéseire. VITUKI Közlemények, Beszámoló 1976-1977, pp. 300-317
- [An-64]: Andersson I. Ö. and Nilsson I.: Exposure following ingestion of water containing radon-222. IAEA Symposium on Assessment of Radioactivity in Man, Vienna, IAEA, pp. 317-326 (1964)
- [An-74]: Andrews J. N. and Wood D. F.: Radium-226, Radon-222 and Lead-210 in Bath thermal springs compared with some environmental waters. Health Physics, Vol. 27, pp. 307-310 (1974)
- [Ar-74]: Artemiu P.: Hargita-megye ásványvíz és mofetta-gáz kincsei. Hargita-megye természetes gyógytényezői, pp. 7-41 (1974)
- [As-80]: Asikainen M. and Kahlos H.: Natural radioactivity of drinking water in Finland. Health Physics, Vol 39 (July), pp. 77-83 (1980)
- [Be-90]: Beneš P.: Speciation procedures, Chapter 3-10 in The Environmental Behaviour of Radium, Technical Report Series No. 310, Vol. 1, pp. 273-299, IAEA, Vienna (1990)
- [BF-96]: Budapest Fürdőváros. ISBN 963 02 9932 1, Budapest (1996)
- [Bo-84]: Bossus D. A. W.: Radiation Protection Dosimetry 7, pp. 73-76 (1984)
- [Bo-95]: Borszéki B.: Nem minden ásványvíz ami pezseg. Élet és Tudomány (1995/33)

- [Bo-98]: Borszéki B.: Ásványvizek, gyógyvizek. A szerző saját kiadása a MÉTE Kiadó gondozásában, ISBN 963 550 583 3, (1998)
- [Br-92]: Brown W. L. and Hess C. T.: Measurement of the biotransfer and time constant of radon from ingested water by human breath analysis. Health Physics 62, pp. 162-170 (1992)
- [Bu-68]: A Budapesti hévizekre vonatkozó alapadatok grafikus és táblázatos összeállítása: A hévízkutak és források részletes műszaki-hidrológiai leírása. Budapest Hévízei. Vízgazdálkodási Tudományos Kutató Intézet, Budapest, pp. 121 (1968)
- [Ch-80]: Chatel A., Fluck I., Horváth J. és Matusek G.: Budapest gyógyfürdői és fürdői. Panoráma Kiadó, Budapest, ISBN 963 243 128 6, (1980)
- [Cl-79]: Clever H. L. (Editor): Solubility Data Series 2, Pergamon Press, pp. 227-234., (1979)
- [Cr-89]: Crawford-Brown D. J.: The biokinetics and dosimetry of radon-222 in the human body following ingestion of groundwater. Environ. Geochem. Health 11, pp. 10-17 (1989)
- [Cs-90]: Csige I.: Szilárdtest nyomdetektor technikai fejlesztése és alkalmazása az űr- és radon dozimetriában. Egyetemi doktori értekezés, Debrecen (1990)
- [Cs-94]: Csige I., Hakl J., Hertelendi E. és Hunyadi I.: Radioaktivitás a légkörben és környezeti hatásai. Fejezetek a környezetfizikából. Szerk. Koltay E., pp. 70-105, Kézirat, KLTE-ATOMKI Közös Fizikai Tanszék, Debrecen, (1994)
- [Cs-01]: Csige I. and Csegzi S.: The Radamon radon detector and an example of application. Radiation Measurements, Vol 34/1-6, pp. 437-440 (2001)
- [Cz-91]: The Ministry of Health of the Czech Republic: Decree 76 on requirements for limiting radiation exposure due to radon and other natural radionuclides. Acts Collection, Part 16, pp. 365-366 (12th February 1991)
- [Di-90]: Dickson B. L.: Radium in groundwater. Chapter 4-2 in The Environmental Behaviour of Radium, Technical Report Series No. 310, Vol. 1, pp. 335-372, IAEA, Vienna (1990)

- [Dö-64]: Von Döbeln W. L. and Lindell B.: Some aspects of Rn-222 contamination following ingestion. *Arkiv för Fysik* 27, pp. 531-572 (1964)
- [Du-87]: Durrani S. A. and Bull R. K.: *Solid State Nuclear Track Detection. Principles, Methods and Applications.* Pergamon Press, Oxford (1987)
- [Ei-87]: Eisenbud M.: *Environmental radioactivity from natural, industrial, and military sources.* Academic Press Inc. (London) Ltd., Third Edition (1987)
- [Fi-93]: Finnish Center for Radiation and Nuclear Safety: *Radioactivity of household water.* ST Guide 12.3, 1-8, ISBN 951-47-8651-3 (9th August 1993)
- [Fis-81]: Fisenne I. M., Keller H. W. and Harley N. H.: *Worldwide measurement of Ra-226 in human bone, estimate of skeletal α -dose.* *Health Physics* 40, pp. 163-171 (1981)
- [Fl75]: Fleischer R. L., Price P. B. and Walker R. M.: *Nuclear tracks in solids.* University of California Press (1975)
- [Fl-78]: Fleischer R. L. and Raabe O. G.: *Recoiling alpha-emitting nuclei-mechanisms for uranium series disequilibrium.* *Geochim. Cosmochim. Acta* 42, pp. 973-978 (1978)
- [Ha-93]: Hazslinszky T., Kraus S., Maucha L., Nádor A., Sásdi L., Szablyár P és T. Bolner K.: *Ajánlás a budai Rózsadomb és környéke termálkarsztja UNESCO Világörökség-listájára történő felterjesztéséhez.* Magyar Karszt- és Barlangkutató Társulat, Budapest, ISBN 963 04 3207 1 (1993)
- [Ha-96]: Hakl J., Hunyadi I., Csige I., Vásárhelyi A., Somlai J., Faludi G. and Varga K.: *Determination of dissolved radon and radium content of water samples by track etch method.* *Environmental International*, Vol. 22, Suppl. 1, pp. S315-S317 (1996)
- [Ha-97]: Hakl J., Hunyadi I., Csige I., Vásárhelyi A., Somlai J.: *Vízminták rádium- és radonkoncentrációjának meghatározása nyomdetektoros módszerrel.* *Magyar Kémiai Folyóirat*, 103. évf. 1997. 5. sz., 224-226
- [He-93]: Henshaw D. L., Perryman J., Keitch P. A., Allen J. E. and Camplin G. C.: *Radon in domestic water supplies in the UK.* *Radiation Protection Dosimetry*, 46, 4: 285-289 (1993)

- [Hu-99]: Hunyadi I., Csige I., Haki J., Baradács E. and Dezső Z.: Temperature dependence of the calibration factor of radon and radium determination in water samples by SSNTD. *Radiation Measurements* 31, pp. 301-306 (1999)
- [ICRP-65]: ICRP Publication 65: Protection against radon-222 at home and at work. *Annals of the ICRP*, Vol. 23. No. 2. (1993)
- [Ju-87]: Juhász Á.: Évmilliók emlékei. Magyarország földtörténete és ásványkincsei. Gondolat Kiadó, Budapest (1987)
- [Ka-96]: Kasztovszky Zs., Kuczai R. and Szerbin P.: On the natural radioactivity of waters in Hungary. *Central European Journal of Occupational and Environmental Medicine*, 2 (4): pp. 335-347 (1996)
- [Ka-00]: Kanyár B., Béres Cs., Somlai J. and Szabó S. A.: Radioökológia és környezeti sugárvédelem. Veszprémi Egyetemi Kiadó, pp. 48-49, Veszprém (2000)
- [Ko-90]: Kobal I., Vaupotič J., Mitic D., Kristian J., Anicik M., Jerancic S. and Skofljanec M.: Natural radioactivity of fresh waters in Slovenia, Yugoslavia. *Environmental International*, Vol. 16, pp. 141-154 (1990)
- [Ko-91]: Korim K.: A magyar balneológia hidrológiai alapjai. Magyar Hidrológiai Társaság kiadványa, Budapest, pp. 12 (1991), XXVII. SITH Kongresszus, Hajdúszoboszló, 1991. 09. 16-20.
- [Ma-96]: Marovic G., Sencar J., Franic Z. and Lokobauer N.: Radium-226 in thermal and mineral springs of Croatia and associated health risk. *Journal Environmental Radioactivity*, Vol. 33, No. 3, pp. 309-317, (1996)
- [Me-98]: Meskó Cs.: Gyógyfürdők. A mi Budapestünk. Egyetemi Nyomda, Budapest, ISBN 963 8376 78 3 (1998)
- [MF-97]: Magyar Fürdőkalauz. Franklin Nyomda és Kiadó Kft., Budapest (1997)
- [Mi-00]: Mink M.: Ásványvízpiaci boom: Szomjaznak rá. *Heti Világgazdaság*, 2000. november 4.
- [Mo-99]: Magyarország atlasza. Cartographia Kft., Budapest, ISBN 963 352 516 0 CM (1999)

- [MSZ 62]: Ionizáló sugárzás elleni védelem-általános előírások. MSZ-62/1989. Magyar Népköztársaság Országos Szabvány (1989)
- [Na-74]: Nagy A.: Hargita-megye gyógyfürdőinek fejlődéstörténete. Hargita-megye Természetes Gyógytényezői, pp. 427-436 (1974)
- [Na-88]: Nazaroff W. W., Moed B. A. and Sextro R. G.: Soil as a source of indoor radon: generation, migration, and entry; in *Radon and its decay products in indoor air*. Edited by Nazaroff W. W., Nero A. V., JR.; A Wiley-Interscience Publication, John Wiley & Sons, pp. 77 (1988)
- [NAÜ-96]: NAÜ Biztonsági Szabályzat, Biztonsági Sorozat, No. 115. (International Basic Safety Standards for Protection Against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources, IAEA, Vienna, 1996), Magyar nyelvű fordítás, OAH, Budapest (1996)
- [Ph-84]: Phillippe M.: On the natural radioactivity of potable waters in Saud Arabia. *Health Physics*, Vol 46/4, pp. 947-949 (1984)
- [Pi-88]: Pires do Rio M. A., Godoy J. M. and Amaral E. C. S.: Ra-226, Ra-228 and Pb-210 concentrations in Brazilian mineral waters. *Radiation Protection Dosimetry*, Vol 24, 1/4, pp. 159-161 (1988)
- [Sá-99]: Sánchez A. M., Montero M. P., Escobar V. G. and Vargas M. J.: Radioactivity in bottled mineral waters. *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 50, pp. 1049-1055 (1999)
- [Sc-57]: Schulhof Ö.: Magyarország ásvány és gyógyvizei. Akadémia Kiadó, Budapest (1957)
- [Sc-89]: Schönhofer F.: Determination of Radon-222 and Radium-226 in Mineral Water and Drinking Water, A Survey in Austria. *Analyst*, Vol 114. pp. 1345-1347 (1989)
- [So-73]: Somogyi György: Atomi részecskék nyomainak regisztrációja szilárd dielektrikumokban. Kandidátusi értekezés, Debrecen (1973)
- [So-90]: Somogyi G.: Method for measuring radium isotopes: Track detection, Chapter 3-8 in *The Environmental Behaviour of Radium*. Technical Report Series, No. 310, Vol. 1, pp. 229-256. IAEA, Vienna (1990)

- [So-01]: Somlai J., Kanyár B., Kovács T., Nényei Á, Horváth G. and Lóczi T.: Palackozott ásványvizek Ra-226 koncentrációja és a fogyasztásától származó lakossági sugárterhelés becslése. Magyar Kémiai Folyóirat, 107. évf. 5. sz., pp. 208-212 (2001)
- [Sw-95]: Swedish National Food Administration: Proposal for limits for radon in drinking water. Letter to the Swedish Ministry of Agriculture, National Food Administration, Dnr 4049/95 (December 1995) (In Swedish)
- [Sz-68]: Szalontai G.: A budapesti hévizek kémiai tulajdonságai. Budapest Hévizei. pp. 59-70, Vízgazdálkodási Tudományos Kutató Intézet, Budapest, (1968)
- [Sz-74]: Szabó Á.: A Hargita-megyei ásványvizek és mofetta-gázok radioaktivitásáról. Hargita-megye Természetes Gyógytényezői, pp. 106-125 (1974)
- [Sz-86]: Szerbin P. és Popov D. K.: Egyszerű módszerek környezeti minták Ra-224 (Th-228), Ra-226 és Ra-228 tartalmának mérése. Izotóptechnika, 29, 33, pp. 156-165 (1986)
- [Sz-94]: Szerbin P.: A Rudas-fürdő légtérben mért radonkoncentráció sugáregészségügyi értékelése. Balneológia, Gyógyfürdőügy, Gyógyidegenforgalom, 1994; 1; pp. 13-22
- [Sz-96]: Szerbin P.: Natural radioactivity of certain spas and caves in Hungary. Environmental International, Vol 22 (1), pp. 389-398 (1996)
- [Sz-99]: Szerbin P. és Köteles Gy.: Az ivóvíz természetes radioaktivitásának felmérése. Egészségtudomány, 43, pp. 287-296 (1999)
- [TASL]: Track Analysis Systems Ltd., H.H. Wills Physics Laboratory, Tyndall Avenue, Bristol BS8 1TL, UK
- [Tó-83]: Tóth Á.: A lakosság természetes sugárterhelése. Akadémiai Kiadó, Budapest (1983), pp. 171-172
- [UN-00]: Exposures from natural sources. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000 Report to the General Assembly, Anex B, United Nations, New York (2000)

- [Va-95]: Varga K., Hunyadi I., Hakl J., Uzonyi I. and Bacsó J.: Gross alpha radioactivity and chemical trace element content of thermal waters measured by SSNTD and XRF methods. Radiation Measurements, Vol. 25, Nos 1-4, pp. 577-580 (1995)
- [Vá-97]: Vásárhelyi A., Csige I., Hakl J. and Hunyadi I.: Spatial distribution of radon content of soil-gas and well-waters measured with etched track radon monitors. Radiation Measurements, Vol. 28, Nos 1-6, pp. 685-690 (1997)
- [WHO-93]: World Health Organization: Guidelines for Drinking Water Quality. Second Edition, Volume 1, Recommendations, Geneva (1993)
- [Wi-90]: Williams A. R. and Kirchmann R. J.: RADIUM: A historical introduction, Chapter 1-1 in The Environmental Behaviour of Radium, Technical Report Series No. 310, Vol. 1, pp. 3-10, IAEA, Vienna (1990)
- [Zs-98]: Zsom L.: Az ásványvizek fogyasztása. Budapesti Közgazdaságtudományi Egyetem, Budapest (1998)

VIII AZ ÉRTEKEZÉS TÉMAKÖRÉBEN MEGJELENT KÖZLEMÉNYEK

1. I. Hunyadi, I. Csige, J. Hakl, **E. Baradács**, Z. Dezső: Temperature dependence of the calibration factor of radon and radium determination in water samples by SSNTD. Radiation Measurements 31, 1999, pp. 301-306
2. **Baradács Eszter**, Hunyadi Ilona, Csige István, Dezső Zoltán: Vízminták ^{226}Ra - és ^{222}Rn -tartalmának meghatározására szolgáló maratottonyom-detektoros eljárás kalibrálása. Magyar Kémiai Folyóirat, kézirat közlésre beküldve
3. Hunyadi, I. Csige, J. Hakl, **E. Baradács**, Z. Dezső: Rn and Ra measurements in water with etched track detector. Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe, Aug. 22-27, 1999, Budapest, Hungary. Ed: S. Deme, CD-ROM, IRPA, ELFT, pp. 173-179 (1999)
4. **E. Baradács**, I. Hunyadi, Z. Dezső, I. Mócsy, I. Csige, P. Szerbin, J. Vaupotič: ^{226}Ra in geothermal waters of the Carpathian Basin. Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe, Aug. 22-27, 1999, Budapest, Hungary. Ed: S. Deme, CD-ROM, IRPA, ELFT, pp. 365-374 (1999)
5. I. Mócsy, Z. Dezső, I. Hunyadi, **E. Baradács**: Effective doses based on ^{226}Ra activity concentration at daily consume of mineral waters. Proceedings of IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe, Aug. 22-27, 1999, Budapest, Hungary. Ed: S. Deme, CD-ROM, IRPA, ELFT pp. 426-429 (1999).
6. **E. Baradács**, I. Hunyadi, Z. Dezső, I. Csige, P. Szerbin: ^{226}Ra in geothermal and bottled mineral waters of Hungary. Radiation Measurements 34, 2001, pp. 385-390

Rövid közlemények és előadások

7. Dezső Zoltán, Hunyadi Ilona, Baradács Eszter, Mócsy Ildikó: Módszerek természetes vizek rádiumtartalmának meghatározására. XXIII: Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam, Balatonkenese, 1998. május 26-28. Absztrakt kötet angol és magyar nyelven, p. 26, 36, előadás
8. Z. Dezső, I. Hunyadi, I. Mócsy, J. Hakl, I. Csige, E. Baradács: Investigation of the Ra-content of thermal waters in the Carpathian basin. Annual Meeting and Conference of the Romanian Society for Radiological Protection on "Natural Radioactivity in balneary Areas", 23-25 September, 1998, Tusnad, Romania, előadás
9. Z. Dezső, I. Hunyadi, E. Baradács, I. Mócsy: Methods for radium determination in natural waters. Annual Scientific Session with International Participation of Institute of Public Health Cluj-Napoca, 30 September- 2 October, 1998, Cluj-Napoca, Romania, (Absztrakt kötet román és angol nyelven, Inst. of Public Health Cluj-Napoca in collaboration with University of Medicine and Pharmacy "Iuliu Hatieganu" Cluj-Napoca, 1998, p. 38-39, 116-117), előadás
10. Hunyadi I., Csige I., Hakl J., Baradács E. and Dezső Z.: Temperature dependence of the calibration factor of radon and radium determination in water samples by SSNTD. 19th International Conference on Nuclear Tracks in Solids, August 31- September 4, 1998, Besancon, France, előadás
11. Baradács Eszter, Hunyadi Ilona, Csige István, Mócsy Ildikó, Dezső Zoltán, Szerbin Pével, Janja Vaupotic: Kárpát-medencei ásványvizek rádiumtartalma. XXIV. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam, Balatonkenese, 1999. május 25-28. (Absztrakt kötet angol és magyar nyelven, p. 68, 57), poszter
12. I. Hunyadi, I. Csige, J. Hakl, E. Baradács, Z. Dezső: Rn and Ra measurements in water with etched track detector. IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe, August 22-27 1999, Budapest, Hungary, (Book of abstr.: p. 43) előadás

13. E. Baradács, I. Hunyadi, Z. Dezső, I. Mócsy, I. Csige, P. Szerbin, J. Vaupotic: ^{226}Ra in geothermal waters of the Carpathian Basin. IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe, August 22-27 1999, Budapest, Hungary, (Book of abstr.: p. 105), poszter
14. I. Mócsy, Z. Dezső, I. Hunyadi, E. Baradács: Effective doses based on ^{226}Ra activity concentration at daily consume of mineral waters. IRPA Regional Congress on Radiation Protection in Central Europe, August 22-27 1999, Budapest, Hungary, (Book of abstr.: p. 121) előadás
15. I. Hunyadi, E. Baradács, Z. Dezső, I. Mócsy, I. Csige, P. Szerbin, J. Vaupotic: SSNTD based radon and radium measurement technique in water samples: results obtained in case of geothermal waters in the Carpathian Basin. Institute "Josef Stefan", Ljubljana, Slovenia, 1999, 14th of December 9.00, seminary talk
16. I. Hunyadi, I. Csige, E. Baradács, Z. Dezső: Radium and radon isotopes as tracers and health risk in the environment. Institute "Josef Stefan", Ljubljana, Slovenia, 1999, 9th of December 9.00, seminary talk
17. Z. Dezső, I. Hunyadi, E. Baradács, I. Mócsy, Z. Makfalvi and P. Somay: Radium in mineral carbonic waters of Hargitha County (Transylvania, Romania). 5th International Conference on Rare Gas Geochemistry, August 30 - September 3, 1999, Debrecen, Hungary, (Book of abstr.: p. 28) előadás
18. E. Baradács, I. Hunyadi, Z. Dezső, I. Csige, P. Szerbin: ^{226}Ra in geothermal and bottled mineral waters of Hungary. 20th International Conference on Nuclear Tracks in Solids. Aug.28-Sept.1 2000, Portorož, Slovenia (Book of abstr.: p. 43), poszter
19. J. Vaupotič, I. Hunyadi, E. Baradács: Thorough investigation of radon in a school with elevated levels. 20th International Conference on Nuclear Tracks in Solids. Aug.28-Sept.1 2000, Portorož, Slovenia (Book of abstr.: p. 94), előadás

20. Baradács Eszter: Természetes vizek radioaktivitása. A Kárpát-medencében gyűjtött ásványvizek Ra-226 tartalmának vizsgálata. Bessenyei György Tanárképző Főiskola, Őszi Fizikus Napok, 2000. Ismeretterjesztő előadás.
21. Csige István, Lénárt László, Baradács Eszter: Építési területek radonveszélyessége, XXVI. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam, Balatonkenese, 2001. május 2-4., előadás
22. Baradács Eszter, Hunyadi Ilona, Dezső Zoltán: Palackozott ásványvizek Rádium-226 tartalma. Őszi Radiokémiai Napok, Mátraháza, 2001. október 17-19., előadás
23. Hunyadi Ilona, Baradács Eszter, Szerbin Pével: Radon és rádium mérések budapesti termálvizekben. Őszi Radiokémiai Napok, Mátraháza, 2001. október 17-19., előadás

Egyéb írásos anyagok

24. J. Vaupotič, I. Hunyadi, **E. Baradács**: Thorough investigation of radon in a school with elevated levels. Radiation Measurements 34, 2001, pp. 477-482.
25. Baradács Eszter: Mélységi vizek rádiumtartalmának meghatározása. Szakdolgozat, Debrecen (1998)
26. Baradács Eszter: Természetes vizek rádiumtartalmának mérése nyomdetektoros módszerrel, Beszámoló a Debreceni Egyetem Fizika doktori programjának "Fizikai módszerek alkalmazása interdiszciplináris kutatásokban" alprogram keretében a Környezetfizika c. tantárgyhoz, MTA Atommagkutató Intézet, Debrecen, 1999, (18 oldal)
27. Hunyadi, I. Csige, J. Hakl, E. Baradács, Z. Dezső: ^{226}Ra determination in water samples by SSNTD. Atomki Annual Report 1998, (1999) p. 52
28. E. Baradács, I. Hunyadi, Z. Dezső, I. Mócsy, I. Csige, P. Szerbin, J. Vaupotič: ^{226}Ra in geothermal waters of the Carpathian Basin. Atomki Annual Report 1999, (2000) p. 58
29. E. Baradács, Z. Dezső, I. Hunyadi: ^{226}Ra in bottled mineral waters of Hungary. Atomki Annual Report 2001, (accepted)

IX KÖSZÖNETNYÍLVÁNÍTÁS

Mindenekelőtt őszintén hálás vagyok Dr. Kiss Árpád Zoltánnak, hogy lehetővé tette dolgozatom nyugodt befejezését, és hogy kitartóan szorgalmazta dolgozatom megírását.

Szeretnék köszönetet mondani témavezetőmnek, Dr. Hunyadi Ilonának, hogy lehetővé tette a dolgozatomban szereplő kutatási programok elvégzését és, hogy az elmúlt évek során mindvégig önzetlen szakmai segítséget és támogatást nyújtott biztosítva ezzel munkám sikeres elvégzését.

Köszönettel tartozom Dr. Dezső Zoltánnak, aki a gamma-spektrometriai módszer elméleti és gyakorlati elsajátításában nyújtott nélkülözhetetlen segítségén túl munkámat végig figyelemmel kísérte és azt tanácsaival, észrevételeivel előrébb lendítette.

Köszönetet mondok Dr. Csige Istvánnak a munkám során, főleg az elméleti vonatkozásokban nyújtott fontos szakmai segítségért, valamint hálásan köszönöm a disszertáció kritikus átolvasását és észrevételeit.

Köszönöm Dr. Hakl Józsefnek a dolgozat gondos átolvasása utáni értékes megjegyzéseit és az ezekkel kapcsolatos hasznos konzultációt.

Köszönetet szeretnék mondani Dr. Szerbin Pévelnek, Dr. Janja Vaupoticnak és Dr. Mócsy Ildikónak a közös munkákért és az ezek során nyújtott szakmai segítségért.

Köszönettel tartozom Molnár Gyulánénak a munkám során nyújtott szakmai és technikai segítségéért.

Végezetül szeretném megköszönni Erdélyi Zoltánnak az önzetlen támogatást, amelyet mind szakmai téren, mind a magánéletben nyújtott és családomnak a türelmet, mellyel biztosították munkám nyugodt háttérét.

X FÜGGELÉK

1. ábra. Magyarország ásvány- és hévizei [Mo-99]
2. ábra. Budapest hévíz előfordulásai [Mo-99]
3. ábra. Budapest környékének földtani és geotermikus szelvényei [Mo-99]
4. ábra. Hargita-megye domborzati térképe és a vizsgált borvizek földrajzi helyzete