

Szybkość uwalniania się ^{222}Rn z wód podziemnych do atmosferyTadeusz A. Przylibski¹, Piotr Maciejewski¹,
Katarzyna D. Zagożdżon¹, Paweł P. Zagożdżon¹

T.A. Przylibski P. Maciejewski K.D. Zagożdżon P.P. Zagożdżon

 ^{222}Rn release rate from groundwater to the atmosphere. Prz. Geol., 70: 742–750; doi: 10.7306/2022.27

A b s t r a c t. The authors conducted studies on the release rate of ^{222}Rn from groundwater flowing out of a spring, from metamorphic reservoir rocks. This source gives rise to a stream about 205 m long. The activity concentration of ^{222}Rn in the spring was about 700 Bq/dm^3 . We found that the rate of radon release into the atmosphere was best described by a third degree polynomial function. This means that the rate of radon release to the atmosphere decreases with distance from the spring. This

process is accelerated by all zones of turbulent water flow in the stream – cascades, waterfalls, rapids, and similar zones. The decrease in the radon concentration to the values characteristic for surface waters in the investigated stream, which was a constant and minimum value, equal to about 1 Bq/dm^3 , took place at a distance of about 170–180 metres from the spring. With regard to the water flow path, flow time and the volume of water flowing through the cross-section of the tested stream, the exhalation coefficient of ^{222}Rn from water to atmospheric air is $3.80 \text{ Bq/dm}^3/\text{m}$, $1.51 \text{ Bq/dm}^3/\text{s}$ and $1.25 \text{ Bq/dm}^3/\text{dm}^3$, respectively. According to the authors, further research conducted in other springs occurring in other types of rocks and under different flow conditions (at different times of the year) will allow characterizing the dynamics of the process of ^{222}Rn release from groundwater through surface waters into the atmosphere. Perhaps this process can be described with a universal mathematical function.

Keywords: Radon, ^{222}Rn , groundwater, radon water, surface water, ^{222}Rn exhalation rate, Śnieżnik metamorphic unit

Pomysł wykonania badań szybkości uwalniania się w warunkach naturalnych promieniotwórczego gazu ^{222}Rn z wypływających na powierzchnię wód podziemnych do atmosfery zrodził się na początku XXI w., a pierwsze wyniki przedstawił Przylibski (2005). W pracy tej, na podstawie badań prowadzonych w 2003 r. w wodzie wypływającej z granitu w źródle Korzennym (masyw granitoidowy Strzegom-Sobótka, Masyw Śleży), stwierdził on, że na odcinku 1,2 m od wypływu stężenie aktywności ^{222}Rn w wodzie maleje o 45%. Na tej podstawie oszacował, że po przepłynięciu kilkunastu metrów stężenie radonu powinno spaść do poziomu charakterystycznego dla wód powierzchniowych (Przylibski, 2005). Późniejsze badania przeprowadzone na dwóch źródłach w skałach metamorficznych i wypływających z nich strumieniach pozwoliły oszacować, że odległość niezbędna do uzyskania stałej, minimalnej wartości stężenia aktywności ^{222}Rn (w przypadku badanych strumieni ok. $0,5 \text{ Bq/dm}^3$) wynosi co najmniej 150 m (Przylibski i in., 2011). Ponieważ wnioski z przeprowadzonych badań różnią się znacznie od siebie i nie zostały potwierdzone kolejnymi wynikami pomiarów, stały się motywy przewodnim opisywanych w niniejszej pracy badań.

Dotychczas tego typu badania nie były prowadzone w świecie, a przynajmniej autorzy nie spotkali się w litera-

turze światowej z publikacjami dotyczącymi tego zagadnienia, poza cytowanym wcześniej własnym abstraktem (Przylibski i in., 2011). Jest to ważny do rozwiązania problem, ponieważ radon (^{222}Rn) może być i jest stosowany jako znacznik w procesach zachodzących w hydrosferze. Jest on wykorzystywany m.in. do identyfikacji stref dopływu wód podziemnych do wód powierzchniowych, a także mieszania się różnych typów wód podziemnych i powierzchniowych (np. Hoehn, von Gunten, 1989; Ellins i in., 1990; Bertin, Bourg, 1994; Cable i in., 1996a, b; Corbett i in., 1997, 1999; Hamada, 1999; Burnett, Dulaiova, 2003, 2006; Burnett i in., 2001; Cook i in., 1999, 2003; Moise i in., 2000; Top i in., 2001; Kim, Hwang, 2002; Wu i in., 2004; Kluge i in., 2007; Schmidt i in., 2009; Dimova i in., 2013; Ferreira i in., 2015; Machinal, 2016; Kim i in., 2019; Al-Hilal, 2020; Sadat-Noori i in., 2021; Strydom i in., 2021). Poznanie szybkości ucieczki ^{222}Rn z wody do atmosfery umożliwi określenie precyzji, z jaką można ten izotop stosować do lokalizowania stref dyslokacyjnych przecinających ciekły wodne, stref mieszania się wód podziemnych z wodami powierzchniowymi lub mieszania się wód podziemnych z różnych zbiorników czy stref przepływu (Przylibski, 2005).

Zasadniczym celem badań autorów jest określenie szybkości uwalniania się ^{222}Rn do atmosfery z wypływającej

¹ Wydział Geoinżynierii, Górnictwa i Geologii, Politechnika Wroclawska, Wybrzeże S. Wyspiańskiego 27, 50-370 Wrocław; Tadeusz.Przylibski@pwr.edu.pl; Piotr.Maciejewski@pwr.edu.pl; Katarzyna.Zagozdzon@pwr.edu.pl; Pawel.Zagozdzon@pwr.edu.pl; ORCID ID: T. Przylibski – 0000-0002-8094-7944, P. Maciejewski – 0000-0003-2757-3100, K. Zagożdżon – 0000-0002-4690-5302, P. Zagożdżon – 0000-0002-5673-3401

w źródle wody podziemnej wraz z biegiem ciekę powierzchniowego. Uzyskanie informacji o skali tego zjawiska umożliwi zaprojektowanie siatki opróbowania cieków powierzchniowych do przyszłych szczegółowych analiz. Będzie to podstawą zrozumienia dynamiki tego procesu. Pozwoli w przyszłości na optymalizację wykorzystania ^{222}Rn jako znacznika stref dopływu (mieszania się) wód podziemnych do wód powierzchniowych, np. w strefach tektonicznych, obszarach krasowych i in.

CHARAKTERYSTYKA GEOLOGICZNA I HYDROGEOLOGICZNA OBSZARU ORAZ OBIEKTU BADAŃ

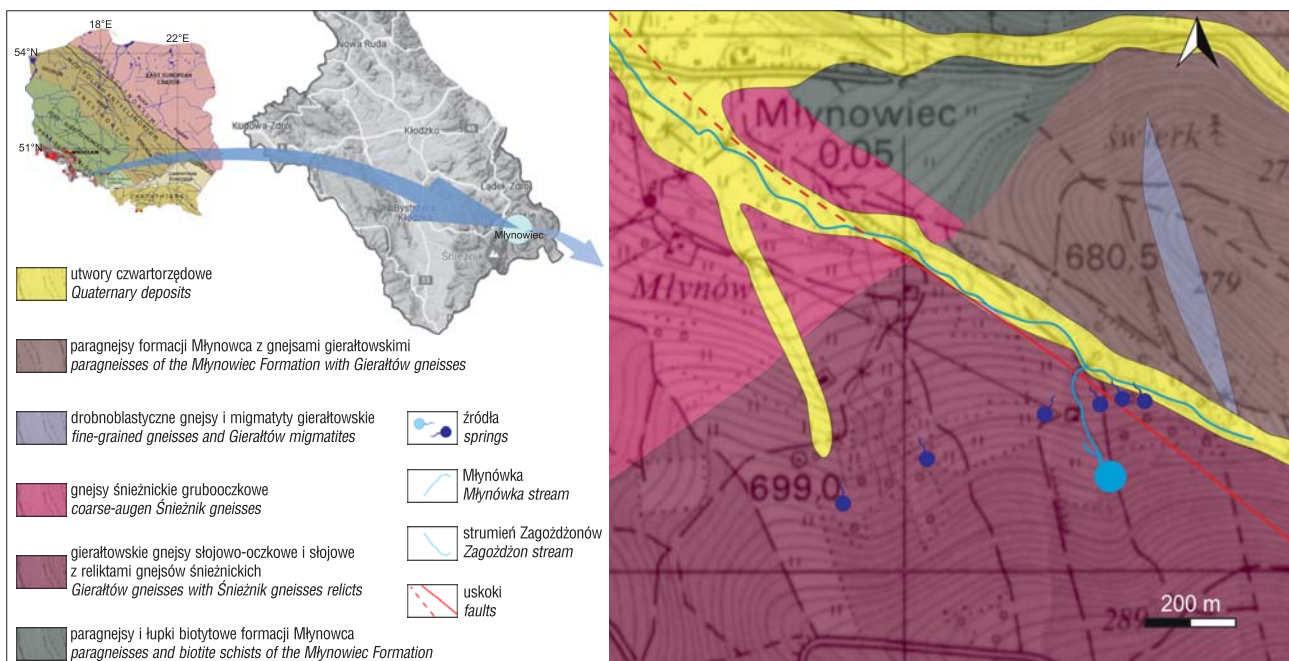
Teren badań znajduje się we wsi Młynowiec (gmina Stronie Śląskie), w zachodniej części Gór Białskich (ryc. 1). Źródło bije na północno-zachodnim stoku góry Suszyca, na rzędnej 704 m n.p.m., w odległości ok. 400 m na N od grani północnego żebra Suszycy, stanowiącego granicę zlewni. Jest to w rzeczywistości źródłisko, na obszarze którego znajdują się trzy główne wypływy położone na odcinku ok. 10 m, liniowo na kierunku WSW–ENE (ryc. 2B). Młaka z szeregiem wysięków obejmuje źródłisko i kontynuuje się ok. 20 m ku wschodowi. Parametry źródła są monitorowane od roku 2003 (tab. 1). Strumień spływa generalnie ku północy, gdzie po ok. 205 m, na wysokości 667 m n.p.m. uchodzi do potoku Mała Młynówka. Na jego profilu podłużnym zaznacza się kilka wyraźnych progów o wysokości 50–80 cm (ryc. 2C). Na odcinku pomiędzy 105 a 130 mb. strumień płynie wzdłuż rozległego obszaru zabagnionego. Na ostatnich 20 m strumień biegnie w aluwach Małej Młynówki.

Teren badań leży w obrębie metamorfiku Śnieżnika, zbudowanego z suprakrustalnych formacji młynowieckiej i strońskiej oraz infrakrustalnych kompleksów ortognejsów śnieżnickich i migmatycznych gnejsów gieraltowskich (wcześniej określanych jako formacja gieraltowsko-śnieżnicka; Cymerman, Cwojdziański, 1986; Don i in., 2003).

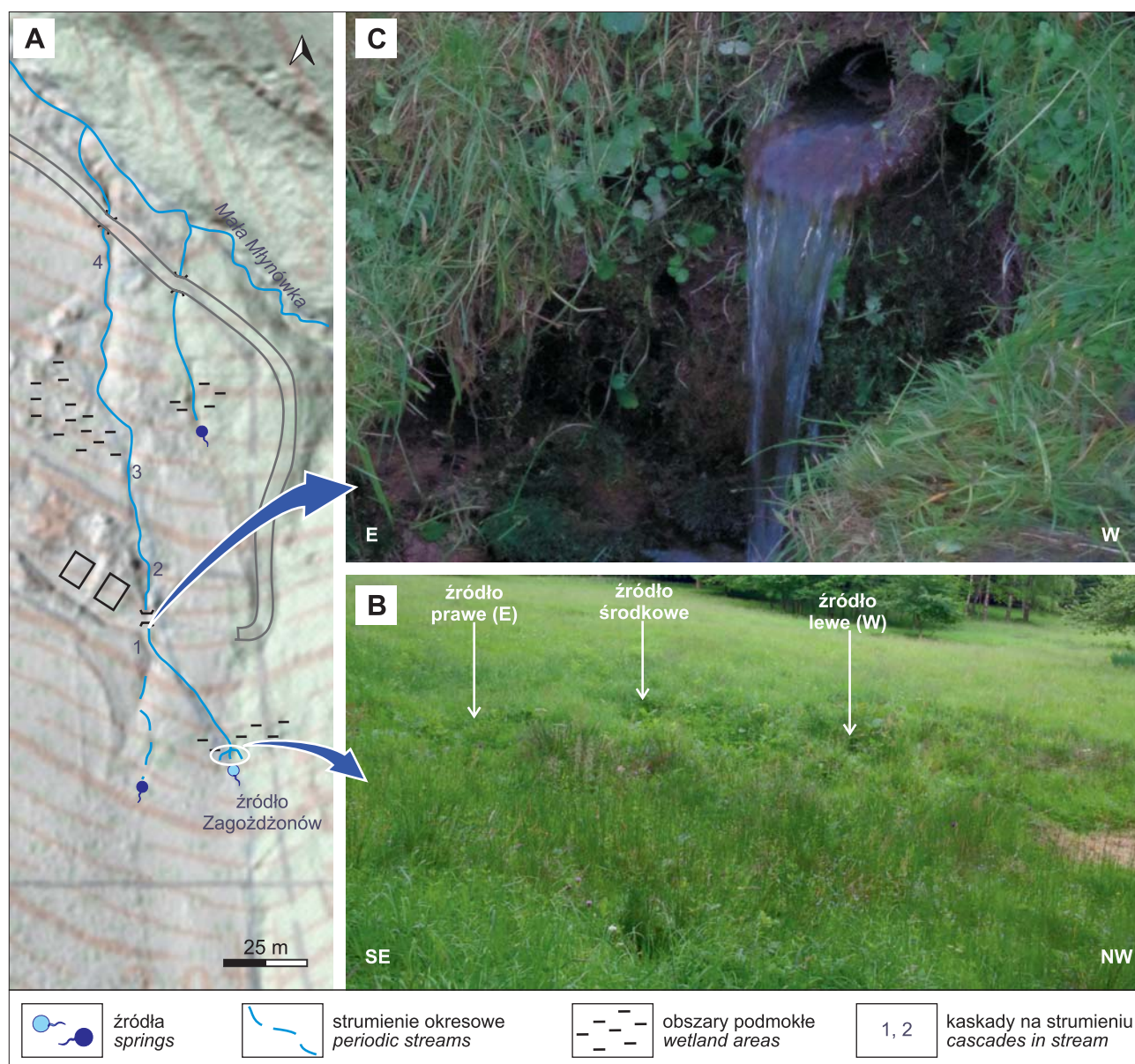
Sedymentacja protolitu formacji suprakrustalnych następowała w okresie od środkowego proterozoiku do wczesnego kambru (Gunia, 1984; Don i in., 2003), a większość datowań granitoidowego protolitu gnejsów śnieżnickich lokuje się w zakresie 520–490 Ma (por. Don i in., 2003). Gnejsy gieraltowskie i śnieżnickie przeszły nieco odmienne ścieżki ewolucji metamorficznej. Pierwsze z nich uległy metamorfozie już w okresie 515–475 Ma, ostatnie epizody metamorficzne miały tu miejsce w karbonie (343–325 Ma) (Redlińska-Marczyńska i in., 2016).

Formację młynowiecką, najstarszy zespół skalny metamorfiku Śnieżnika, stanowi monotony zespół ciemnoszarych paragnejsów i łupków łuszczkowych (Don i in., 2003). W obrębie formacji strońskiej wyraźnie dominują łupki łuszczkowe i gnejsy plagioklazowe, ponadto występują łupki grafitowe, amfibolity, marmury oraz różnorodne przejściowe odmiany litologiczne. W spągu formacji strońskiej występuje ciągły horyzont kwarcytów podstawowych (Cymerman, 1988; Don i in., 2003). Gnejsy śnieżnickie to skały o teksturach oczkowych, słojuowo-oczkowych, bądź słojuowych, o znamionach silnych deformacji, w tym mylonityzacji. Wyraźnie zaznacza się facja brzeżna intruzji, obecnie mająca postać drobnooczkowej, aplitowej odmiany gnejsu (Cymerman, 1988; Don, Opletal, 1996; Don i in., 2003). Kompleks gnejsów i migmatytów gieraltowskich tworzą jasne, szare, lub szaroróżowe, drobnokrystaliczne skały, bardzo zróżnicowane pod względem cech strukturalno-teksturalnych – cienkolaminowane, smużyste, migmatyczne, szlirowe, nebulitowe, flebitowe i in. (Cymerman, 1988; Don i in., 2003). W obrębie gnejsów występują też różnej wielkości ciała granulitowe i ultrabazytowe (Don i in., 2003).

Rejon górnego Młynowca, gdzie zlokalizowane jest źródło dające początek analizowanemu strumieniowi, znajduje się na granicy dwóch wydzieleni litostratygraficznych. W części południowej występują gnejsy gieraltowskie z relikdami gnejsów śnieżnickich (Don i in., 2003), przez Cymermana i Cwojdziańskiego (1984) określone jako gnej-



Ryc. 1. Mapa geologiczna obszaru badań wg Cymermana i Cwojdziańskiego (1986), Dona i in. (2003) oraz badań własnych autorów
Fig. 1. Geological map of the research area after Cymerman and Cwojdziański (1986), Don et al. (2003) and author's own research



Ryc. 2. Mapa rejonu strumienia (A) oraz fotografie przedstawiające strefę źródłiskową źródła Zagożdżonów (B) i „wodospad” – kaskadę na 47. metrze strumienia (C)

Fig. 2. A map of the stream area (A) and photographs showing the springs zone of the Zagożdżonów spring (B) and a “waterfall” – a cascade at metre 47 of the stream (C)

sy słojuowo-oczkowe (z przejściami do warstewkowych i smużystych). Na północy, w strefie przyujściowej strumień wkracza na obszar łupków biotytowych i paragnej-sów plagioklazowych formacji Młynowca (Cymerman, Cwojdzński, 1986; Don i in., 2003). Kontakt obu jednostek, wg cytowanych autorów, ma charakter granicy litologicznej albo tektonicznej (przypuszczalnie nasunięcia). Biorąc pod uwagę obserwacje z tego obszaru autorzy przychylają się do drugiego z tych poglądów (ryc. 1).

Najwyższą część profilu geologicznego stanowi w rejonie Młynowca zwierztały rumosz, przechodzący ku górze w glinę zboczową z licznymi fragmentami gnejsu, o łącznej miąższości do ok. 2,5 m. W tych najmłodszych osadach czwartorzędowych wypływa woda podziemna źródła Zagożdżonów, formując badany strumień. Źródło i strumień zostały wybrane przez autorów do badań pilotażowych. Nazwę swoją źródło otrzymało ponad 20 lat temu

(nazwę nadali autorzy: T.A.P., K.D.Z. i P.P.Z.) w związku z tym, że znajduje się ono na gruncie należącym do rodziny Zagożdżonów, zasila także ich budynek w wodę przeznaczoną do spożycia. Charakterystykę wody podziemnej wypływającej z tego źródła przedstawiono w tabeli 1.

Zmiany wydajności źródła Zagożdżonów oraz zmienność cech fizykochemicznych wody wskazują, że wpływają w nim wody płytkiego krążenia w systemie szczelin sięgających kilkudziesięciu metrów głębokości. Jest to typowy wypływ wód podziemnych pośredniego systemu krążenia – w płytkich zbiornikach szczelinowych w skałach krystalicznych Sudetów (Staśko, 1996; Staśko, Tarka, 2002). Są to wody współczesnej infiltracji o bardzo małej mineralizacji ogólnej – wody ultrasłódkie. Natomiast wyniki przedstawione w tabeli 2 dowodzą, że są to wody radonowe, zgodnie z klasyfikacją Przylibskiego (2005, 2011). Według tego autora mamy do czynienia z typowym źródłem wód radonowych w utworach krystalicznych.

Tab. 1. Podstawowe parametry fizykochemiczne wody podziemnej wypływającej w źródle Zagożdżonów oraz jego wydajność (w nawiasie podano maksymalną zanotowaną wartość wydajności po rzadkich, wyjątkowo obfitych, nawałnicowych opadach); pomiar wydajności wykonano 15× (na 47. metrze strumienia), pomiar pozostałych parametrów 5× pomiędzy 2003 a 2022 rokiem; przyjęto TDS = 0,7•SEC

Table 1. Basic physicochemical parameters of groundwater flowing out of the Zagożdżonów spring and its discharge (the maximum value of the recorded discharge after rare, exceptionally abundant (stormy) rainfall is given in parentheses); measurements of the discharge were made 15× (on the 47th meter of the stream), and the other parameters were measured 5× between 2003 and 2022; accepted TDS = 0,7•SEC

Temperatura Temperature	Przewodność elektro- lityczna właściwa Specific electric conductivity	Mineralizacja ogólna Total dissolved solids	pH	Potencjał red-ox Redox potential	Wydajność Discharge
T [°C]	SEC [S/cm]	TDS [ppm]	[–]	Eh [mV]	Q [dm ³ /min] Q [m ³ /h]
zakres / range 6,2–7,4	zakres / range 35,3–92,6	zakres / range 24,7–65,0	zakres / range 5,74–6,73	zakres / range +266 – +274	zakres / range 36–145 (1080) 2,2–8,7 (64,8)
średnia / mean 7,0	średnia / mean 66,5	średnia / mean 50,9	średnia / mean 6,23	średnia / mean +270	średnia / mean 90,5 5,4

METODY BADAŃ

Autorzy przeprowadzili badania na podstawie prac terenowych wykonanych w dn. 30.10.2021 i 09.04.2022 r. W pierwszym dniu zostały pobrane próbki wody w źródle prawym i środkowym, a następnie w odległości od nich odpowiednio: 1,0; 2,0; 5,0; 10,0; 20,0; 30,0; 47,0 oraz 47,5 m. Należy podkreślić, że ostatnie dwie próby pobierano przed i po przepłynięciu wody przez tzw. wodospad. Autorzy spodziewali się, że turbulentny przepływ wody na tej kaskadzie (ryc. 2B) spowoduje gwałtowny spadek stężenia aktywności ²²²Rn w wodzie. Otrzymane wyniki wykazały wciąż znaczną wartość stężenia aktywności ²²²Rn w ostatnim punkcie pomiarowym, tj. za „wodospadem” (161 ± 6 Bq/dm³). Wartość taka nie jest typowa dla wód powierzchniowych (Girault i in., 2018). W związku z tym podczas kolejnych prac terenowych (09.04.2022 r.) wydłużono zasięg oprobowania strumienia o punkty położone w odległości od źródła odpowiednio: 60,0; 78,0; 126,0; 168,0 i 183,0 m, dodano również punkt pomiarowy w odległości 40 m od źródła. Tego dnia pobrano również próbki wody z lewego źródła.

Podczas prac terenowych w każdym ze źródeł za pomocą multimetru WTW 3430 mierzono podstawowe parametry fizykochemiczne: temperaturę (T), potencjał oksydacyjno-redukcyjny (Eh), przewodnictwo elektryczne właściwe (PEW) oraz odczyn wody podziemnej (pH). Następnie za pomocą strzykawki z każdego zlokalizowanego wypływu wód podziemnych na obszarze mlaki źródła Zagożdżonów oraz z każdego punktu oprobowania wody w strumieniu pobierano po dwie próbki wody o objętości 10 cm³. Pobraną wodę wstrzykiwano za pomocą igły i strzykawki do przygotowanego wcześniej naczynka scyntylacyjnego. W naczynku tym znajdowało się przygotowane w laboratorium 10 cm³ ciepłego scyntylatora Insta-Fluor™ Plus. Wodę wstrzykiwano na dno naczynka pod warstwę scyntylatora. Woda nie miesza się ze scyntylatorem, powodując wytworzenie w naczynku dwóch warstw – leżącej na dole wody i znajdującego się nad nią scyntylatora. Po wstrzyknięciu próbek wody energicznie wstrząsano naczynkiem, aby zawarty w wodzie radon uwolnił się i rozpuścił w ciepłym scyntylatorze. Po wstrząśnięciu w ciągu kilku sekund dochodzi do ponownego rozdziału wody od scyntylatora przy czym radon pozostaje w warstwie scyntylatora, w którym jest lepiej rozpuszczalny niż w wodzie.

latora przy czym radon pozostaje w warstwie scyntylatora, w którym jest lepiej rozpuszczalny niż w wodzie.

Następnie próbki w naczynkach scyntylacyjnych transportowano do Laboratorium Nauk o Ziemi i Inżynierii Mineralnej Politechniki Wrocławskiej. W Pracowni Chemii i Izotopów po odczekaniu czasu niezbędnego do ustalenia się równowagi promieniotwórczej pomiędzy ²²²Rn a jego krótkożycoowymi pochodnymi, wykonywano zasadniczy pomiar stężenia aktywności ²²²Rn. W tym czasie próbki uzyskiwały również stałą temperaturę panującą wewnątrz spektrometru (tj. 18,2°C) oraz wygaszane były błyski będące efektem ekspozycji na białe światło dzienne.

Pomiary stężenia aktywności ²²²Rn w próbkach wody wykonano za pomocą ultraniskotłowego spektrometru ciekłoscyntylacyjnego α/β Quantulus 1220. Spektrometr ten wykorzystuje dwa zjawiska: scyntylacji oraz fotoelektryczne zewnętrzne. Za sprawą pierwszego z nich powstają błyski świetlne w wyniku reakcji scyntylatora z promieniowaniem jonizującym emitowanym przez ²²²Rn i produkty jego rozpadu. Drugie z nich pozwala na rejestrowanie błysków światła jako impulsów prądu elektrycznego. Liczba zmierzonych impulsów jest wprost proporcjonalna do liczby przemian promieniotwórczych alfa zachodzących w scyntylatorze. Zmierzona liczba impulsów jest więc miarą stężenia aktywności ²²²Rn. Przeliczenie liczby impulsów na wartość stężenia aktywności ²²²Rn możliwa jest na podstawie kalibracji spektrometru przeprowadzonej przy wykorzystaniu roztworów kalibracyjnych o znanym stężeniu aktywności ²²²Rn (Przylibski, 2005; L'Annunziata, 2012).

Pomiary spektrometryczne programowano za pomocą aplikacji WinQ. Każde naczynko pomiarowe poddawano dziewięciu 60-minutowym pomiarom, co oznacza, że w każdej próbce wody wykonywano 18 pomiarów stężenia aktywności ²²²Rn.

Wykorzystanie programu Microsoft Excel pozwoliło następnie na przeprowadzenie analizy otrzymanych wyników. Obliczono średnią ważoną liczby zarejestrowanych impulsów. Dla pomiarów stężenia aktywności ²²²Rn niepewność pomiaru została zdefiniowana jako złożona niepewność dla nieskorelowanych mierzonych parametrów. Był to pierwiastek sumy iloczynów kwadratów pochodnych cząstkowych i kwadratów odchyłań standardowych

wartości średnich dla: liczby zliczeń cząstek alfa, objętości próbek wody i współczynnika korekcji. Na tej podstawie otrzymywano ostateczny wynik wraz z niepewnością jego oznaczenia.

WYNIKI BADAŃ

Uzyskane wyniki pomiarów stężenia aktywności ^{222}Rn w analizowanych próbkach wody przedstawiono w tabeli 2. Zawiera ona wartości zmierzone w wodzie podziemnej pojawiającej się w źródłisku w dwóch lub trzech skoncentrowanych wypływach, zależnie od pory roku. Kolejne wyniki (tab. 2) pochodzą z analizy wody powierzchniowej z potoku utworzonego przez wypływającą wodę podziemną. Po przepłynięciu 5 m od wypływów strumienie łączą się, tworząc jeden skoncentrowany ciek powierzchniowy. Ostatnią próbkę wody pobrano na 183. metrze potoku, gdzie rozcina on już aluwia Małej Młynówki.

Na rycinie 3 przedstawiono wartości stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie potoku w zależności od odległości od źródła Zagożdżonów. Zaznaczają się niewielkie różnice wartości uzyskane w próbkach wody pobranych w tych samych punktach w różnym czasie opróbowania – w październiku (ryc. 3B) i w kwietniu (ryc. 3C). Niemniej jednak najbardziej charakterystyczną cechą wykresów jest spadek zawartości ^{222}Rn rozpuszczonego w wodzie spowodowany jego ucieczką do atmosfery. Pomiar prędkości przepływu wody w strumieniu oszacowany metodą pływakową pozwala określić ją na 0,1875 m/s oraz 0,3969 m/s, odpowiednio 30.10.2021 i 9.04.2022 r. Czas przepływu wody od źródła do 183 mb., tj. ostatniego punktu opróbowania, wynosi zatem ok. 461–976 s (7,7–16,3 min), co oznacza, że zmiana stężenia aktywności ^{222}Rn wywołana jego rozpadem promieniotwórczym ($T_{1/2} = 3,82$ doby; Collé, 1995a, b; Bellotti i in., 2015) jest zaniedbywalna. Wynosi ona 0,10–0,20% początkowej ilości ^{222}Rn w źródle, tj. odpo-

wiednio od 0,7 do 1,4 Bq/dm³. Jednocześnie, jak wynika z tabeli 1, objętość przepływającej w strumieniu wody wynosi średnio 90,5 dm³/min (5,4 m³/h). W czasie wykonywania pomiarów w kwietniu wynosiła ona 72,54 dm³/min (4,35 m³/h). Drugim zjawiskiem wyraźnie zaznaczającym się na wykresach (ryc. 3) jest gwałtowny spadek stężenia aktywności ^{222}Rn na „wodospadzie” (por. ryc. 1 i 2B). Sięga on kilkunastu procent (13–17%) na odległości zaledwie 0,5 m.

W czasie pierwszego opróbowania autorzy zakładali, że stężenie aktywności ^{222}Rn osiągnie wartości charakterystyczne dla wód powierzchniowych, tj. rzędu od tysięcznych części bekerela do kilku, rzadko kilkudziesięciu Bq/dm³ (średnia geometryczna wynosi 0,0088 ± 0,0018 Bq/dm³; Girault i in., 2018), po przepłynięciu przez wodę ok. 50 m. Oczekiwano tak znacznego obniżenia stężenia radonu, tym bardziej, że w odległości 47 m od źródła znajduje się wspomniana niewielka kaskada. Woda zaczyna płynąć tam turbulentnie i dodatkowo rozbryzguje się na tafli poniżej progu. Dzięki temu uwalniana jest znaczna ilość radonu z wody do atmosfery. Okazuje się jednak, że dopiero po przepłynięciu 126 m woda zawiera spodziewaną koncentrację ^{222}Rn charakterystyczną dla wód powierzchniowych. Niemniej jednak spada ona jeszcze do wartości poniżej 1 Bq/dm³ w odległości 183 m od źródła. Charakter spadku nie jest prostoliniowy (nie da się go opisać funkcją pierwszego stopnia).

DYSKUSJA

Otrzymane przez autorów wyniki pomiarów świadczą o tym, że spadek stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie podziemnej, która wypływa w źródle i następnie tworzy strumień, ma charakter inny niż prostoliniowy. Widoczny jest spadek tempa uwalniania się radonu z wody do atmosfery wraz odległością od źródła. Jest to zjawisko charaktery-

Tab. 2. Wyniki pomiarów stężenia aktywności ^{222}Rn w wypływającej w źródle Zagożdżonów wodzie podziemnej oraz w wodzie potoku

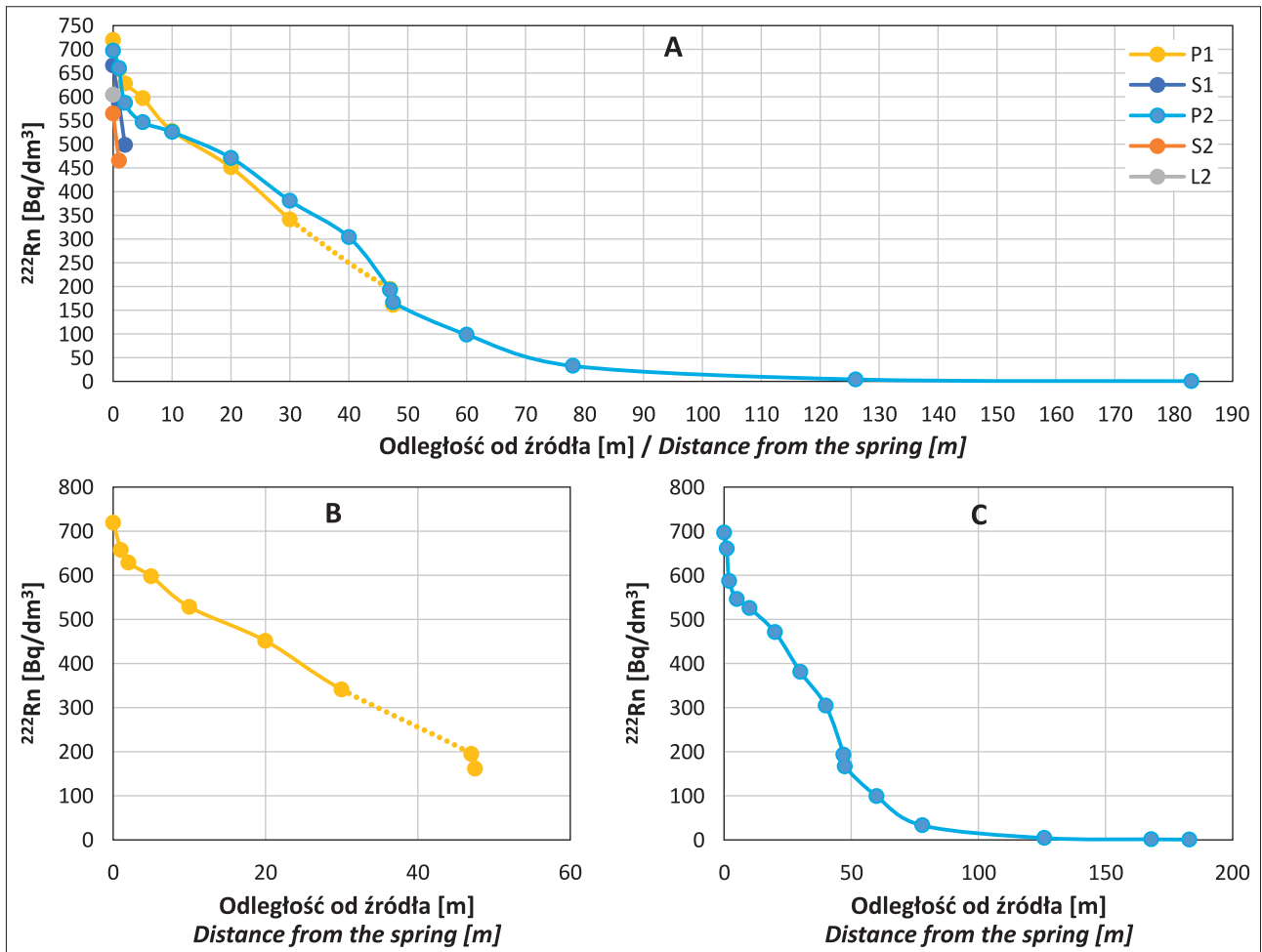
Table 2. Results of measurements of the ^{222}Rn activity concentration in groundwater flowing out of the Zagożdżonów spring and in the stream water

Odległość od źródła <i>Distance from the spring</i>	Pomiary z dn. 30.10.2021 r. <i>Measurements of 30.10.2021</i>		Pomiary z dn. 9.04.2022 r. <i>Measurements of 09.04.2022</i>		
	prawe <i>right</i>	środkowe <i>middle</i>	prawe <i>right</i>	środkowe <i>middle</i>	lewe <i>left</i>
[m]	[Bq/dm ³]		[Bq/dm ³]		
0,0	719 ±20	666 ±19	697 ±25	465 ±19	604 ±20
1,0	657 ±19	586 ±17	660 ±23	564 ±17	–
2,0	628 ±18	498 ±15	587 ±22	606 ±22	–
5,0	597 ±17		546 ±19		
10,0	528 ±16		526 ±18		
20,0	451 ±14		471 ±16		
30,0	341 ±12		381 ±14		
40,0	–		304 ±12		
47,0	195 ±7		193 ±8		
47,5	161 ±6		167 ±7		
60,0	–		99 ±5		
78,0	–		32,8 ±2,3		
126,0	–		4,44 ±0,66		
168,0	–		1,54 ±0,35		
183,0	–		0,92 ±0,28		

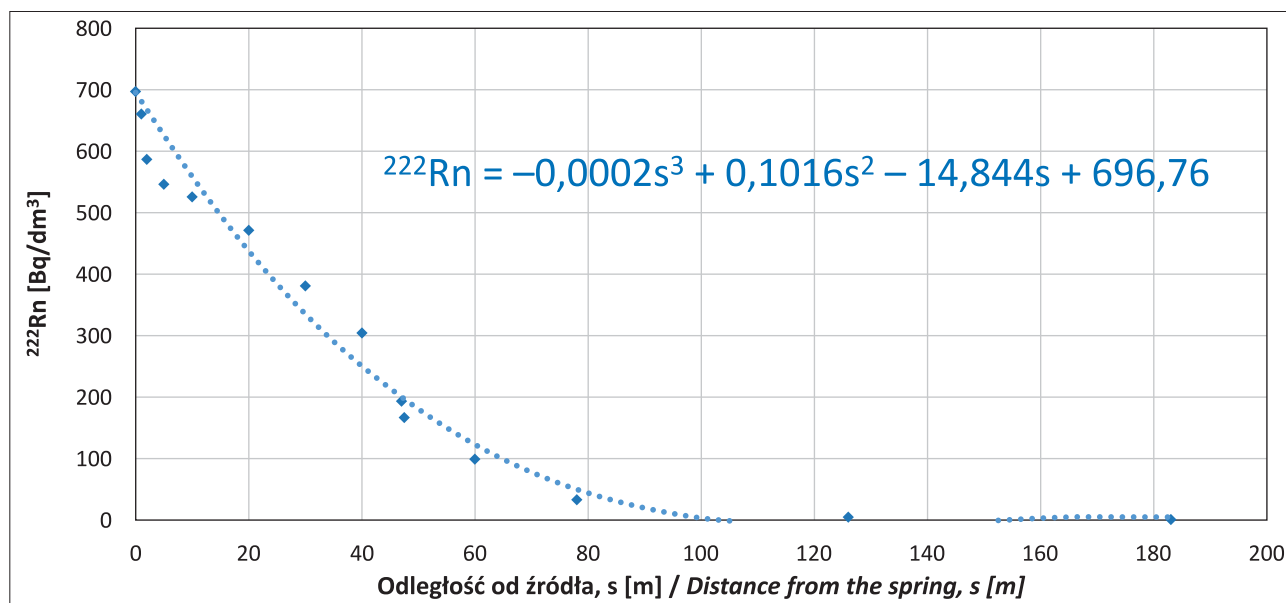
styczne dla gazów dobrze rozpuszczalnych w wodzie, do których należy radon (Miliszkievicz, 1978; Przylibski, 2005). Rycina 4 przedstawia wykres i równanie funkcji wielomianowej trzeciego stopnia, która w najlepszy sposób opisuje proces uwalniania się ^{222}Rn z wody podziemnej do atmosfery po jej wypłynięciu na powierzchnię. Dopasowanie krzywej teoretycznej do punktów eksperymentalnych jest bardzo dobre, nawet mimo zakłócającego ten proces turbulencyjnego przepływu wody przez kaskadę w odległości 47 m od źródła (por. ryc. 4).

Interpretacja fizyczna uzyskanej wielomianowej funkcji prędkości ucieczki ^{222}Rn z wody podziemnej, która wypływając w źródle, tworzy następnie strumień (ciek powierzchniowy), do atmosfery jest zgodna z intuicją. W miarę spadku stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie maleje także różnica (gradient) stężenia radonu pomiędzy wodą a atmosferą. W efekcie spadku tego gradientu maleje także szybkość uwalniania się radonu z wody do atmosfery (z wyjątkiem stref turbulencyjnego przepływu). Co więcej, uzyskane wyniki pomiarów stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie pozwalają na identyfikację stref, w których następuje dopływ wody podziemnej do strumienia. Strefy

te charakteryzują się nieregularnymi zmianami wartości stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie, w tym zwłaszcza zwiększenia się koncentracji radonu w wodzie powierzchniowej, na skutek dopływu wody podziemnej zawierającej większą koncentrację tego gazu. W efekcie obserwujemy zmiany stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie, takie jak w strefie źródłiskowej źródła Zagożdżonów, tj. między zerowym a piątym metrem strumienia (por. tab. 2; pomiar z dn. 09.04.2022 r., źródło środkowe). Dzięki zaobserwowaniu tego zjawiska autorzy mogą weryfikować także istnienie innych stref dopływu wód podziemnych do wody strumienia na całej jego długości. Gdyby strumień drenował wody podziemne w innym niż strefa źródłiskowa miejscu, to wówczas pomiary stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie wykazałyby wartości większe niż przed tą strefą. Jednocześnie spowodowałyby to pojawienie się istotnego odstępstwa punktów reprezentujących pomiary od dopasowanej krzywej teoretycznej reprezentującej funkcję wielomianową. Ponieważ autorzy nie stwierdzili takiego efektu dla badanego strumienia, to przyjmują, że poza strefą źródłiskową potok nie drenuje wód podziemnych. Oznacza to, że można także zastosować w tym celu niezależną



Ryc. 3. Wykres przedstawiający wartości stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie w zależności od odległości od źródła. **A** – wyniki dla wszystkich pobranych prób w dn. 30.10.2021 i 09.04.2022 r., **B** – dla prób pobranych w dn. 30.10.2021 r. oraz **C** – dla prób pobranych w dn. 09.04.2022 r. Wykresy B i C sporządzono od źródła prawego, charakteryzującego się największą koncentracją ^{222}Rn ; P1, S1, P2, S2, L2 – oznaczenia wypływów odpowiednio prawy, środkowy w dn. 30.10.2021 r. oraz prawy, środkowy, lewy w dn. 09.04.2022 r.
Fig. 3. Graph showing the ^{222}Rn activity concentration in water depending on the distance from the spring. **A** – results for all samples taken on October 30, 2021 and April 9, 2022, **B** – for samples taken on October 30, 2021 and **C** – for samples taken on April 9, 2022. Graphs B and C were prepared from the right source with the highest concentration of ^{222}Rn ; P1, S1, P2, S2, L2 – designations of outflows, respectively: right, centre on October 30, 2021, and right, centre, left on April 9, 2022



Ryc. 4. Wykres przedstawiający linię trendu (linia przerywana) wyznaczoną na podstawie wartości stężenia aktywności ^{222}Rn zmierzonych w wodzie pobranej z poszczególnych punktów opróbowania od wypływu w prawym źródle do odległości 183 m od źródła Zagożdżonów w dn. 09.04.2022 r.

Fig. 4. Graph showing the trend line (dashed line) determined on the basis of the ^{222}Rn activity concentration measured in water collected from individual sampling points from the outflow in the right spring to a distance of 183 m from the Zagożdżonów spring on 09.04.2022

metodą sprawdzenia istnienia lub braku istnienia stref dopływu (drenażu) wód podziemnych do strumienia, jaką są dodatkowe pomiary wydatku (objętości przepływającej wody w jednostce czasu; natężenia przepływu) w różnych profilach strumienia. W przypadku wód o dużej mineralizacji (znacznie większej niż w badanym strumieniu) można także do tego celu wykorzystać pomiary podstawowych parametrów fizykochemicznych wody, jak np. PEW, TDS, Eh i in. Powinny one wykazywać istotne różnice w strefach dopływu wody podziemnej do strumienia (w strefach drenażu).

Otrzymane przez autorów wyniki eksperymentu dają wyobrażenie o dynamice procesu uwalniania się ^{222}Rn z wody podziemnej do atmosfery, po jej wypłynięciu na powierzchnię. Uzyskana zależność ma charakter wielomianowy trzeciego stopnia. Wymaga ona teraz potwierdzenia pomiarami w innych źródłach zlokalizowanych zarówno w podobnych, jak i innych typach skał zbiornikowych oraz w różnych warunkach przepływu, tj. przy różnej objętości i prędkości płynącej wody, a także przy różnym początkowym stężeniu aktywności ^{222}Rn w źródle. Dzięki przeprowadzonemu eksperymentowi autorzy mają wiedzę o projektowaniu kolejnych eksperymentów, przede wszystkim pod względem gęstości opróbowania cieku (strumienia) oraz odległości od źródła, w jakiej warto jeszcze sprawdzać stężenie aktywności ^{222}Rn . Niewątpliwie należy wybierać strumienie o długości przekraczającej 200 m, aby można było wykonać co najmniej w dwóch punktach pomiar, którego wynik będzie porównywalnym w granicach błędów minimum. Będzie to wówczas świadczyć o tym, że spośród dwóch ostatnich punktów to w tym bliższym źródła dochodzi do ustalenia się równowagi dynamicznej pomiędzy dopływem ^{222}Rn z dna i brzegów koryta, a jego ucieczką do atmosfery i w zasadzie zaniedbywalnym rozpadzie promieniotwórczym.

Autorzy nie stwierdzili także istotnych różnic w opisywanym procesie uwalniania się ^{222}Rn z wody do atmosfery w różnych porach roku, tj. jesienią i wiosną. Niemniej jed-

nak zagadnienie to wymaga dalszych badań i weryfikacji, ponieważ wydaje się logiczne, że na uzyskane wartości może mieć wpływ zarówno objętość przepływającej w korycie wody, jak i związana z nią prędkość jej przepływu.

Korzystając z oszacowanych wartości prędkości przepływu wody w strumieniu (0,3969 m/s; metodą pływawkową) oraz wydajności źródła (72,54 dm³/min; metodą wolumetryczną na 47. metrze strumienia), autorzy oszacowali średnią szybkość ucieczki ^{222}Rn (ekshalacji) do atmosfery z wody podziemnej pojawiającej się w źródle i dającej początek strumieniowi. Prędkość ta dla badanego w eksperymencie strumienia wynosi:

- 3,80 Bq/dm³/m – średnio z każdym przepłyniętym metrem woda traci 3,8 Bq ^{222}Rn w każdym litrze,
- 1,51 Bq/dm³/s – średnio co sekundę z wody do atmosfery jest uwalniane 1,51 Bq ^{222}Rn z każdego litra,
- 1,25 Bq/dm³/dm³ – średnio z każdym litrem wody, który przepłynie przez dowolny przekrój strumienia do atmosfery uwalnia się 1,25 Bq ^{222}Rn z każdego litra.

Należy także podkreślić bardzo istotną rolę kaskad i innych stref przepływu turbulentnego wody w uwalnianiu radonu do atmosfery. Każda taka strefa powoduje gwałtowny spadek stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie na skutek jego uwolnienia do atmosfery. Trzeba stwierdzić jednocześnie, że proces rozpadu promieniotwórczego ^{222}Rn nie ma istotnego wpływu na proces obniżania się stężenia aktywności tego izotopu w wodzie wraz z odległością od źródła. Jest on odpowiedzialny za zmniejszenie się stężenia aktywności ^{222}Rn na całej badanej długości strumienia o zaledwie 0,1–0,2%.

WNIOSKI

Na podstawie przeprowadzonych badań autorzy uzyskali funkcję wielomianową trzeciego stopnia opisującą szybkość uwalniania się ^{222}Rn z wody podziemnej, a następnie powierzchniowej do atmosfery. Na tej podstawie stwierdziliśmy, że proces uwalniania się radonu do atmos-

fery zachodzi najszybciej przy źródle, a następnie jego prędkość maleje. Jest to spowodowane zmniejszaniem się gradientu stężenia aktywności ^{222}Rn pomiędzy wodą a powietrzem atmosferycznym. W badanym źródle Zagożdżonów i strumieniu stężenie aktywności ^{222}Rn spada do wartości minimalnej, która jest stała i charakterystyczna dla dynamicznej równowagi pomiędzy ilością uwalnianego ze skał dna i brzegów strumienia a ilością uwalnianego z wody do atmosfery radonu. Rozpad promieniotwórczy ^{222}Rn ze względu na czas przepływu wody w strumieniu znacznie krótszy od okresu półrozpadu ^{222}Rn może być zaniedbany. Wartość stężenia równowagowego ^{222}Rn w wodzie strumienia Zagożdżonów autorzy zanotowali w odległości ok. 170–180 m od źródła. Na tym odcinku strumienia mierzone wartości stężenia aktywności ^{222}Rn są sobie równe w granicach niepewności oznaczenia i wynoszą ok. 1 Bq/dm^3 . Jest to wartość mieszcząca się w zakresie typowych wartości dla stężenia radonu w wodach powierzchniowych.

W odniesieniu odpowiednio do drogi przepływu wody, czasu przepływu oraz objętości wody przepływającej przez przekrój poprzeczny strumienia współczynnik ekshalacji ^{222}Rn z wody do powietrza atmosferycznego wynosi odpowiednio: $3,80 \text{ Bq/dm}^3/\text{m}$, $1,51 \text{ Bq/dm}^3/\text{s}$ i $1,25 \text{ Bq/dm}^3/\text{dm}^3$.

Konieczne są dalsze badania tego procesu w innych źródłach wypływających nie tylko ze skał metamorficznych, ale także magmowych i osadowych różnych typów litologicznych i o różnym składzie mineralnym, a co za tym idzie także o różnej początkowej zawartości radonu w źródle. Należy również prowadzić pomiary w różnych porach roku, aby scharakteryzować proces uwalniania się radonu z wody podziemnej i powierzchniowej do atmosfery w różnych warunkach dynamicznych przepływu wody. Wprawdzie pomiary stężenia aktywności ^{222}Rn w wodzie są wystarczające do identyfikacji stref drenażu wód podziemnych do wód powierzchniowych badanych strumieni, jednak można je dodatkowo weryfikować za pomocą pomiarów objętości przepływającej wody w jednostce czasu (natężenia przepływu) w różnych profilach potoku. Przeprowadzenie tych badań naszym zdaniem pozwoli scharakteryzować dynamikę procesu uwalniania się ^{222}Rn z wód podziemnych przez wody powierzchniowe do atmosfery. Być może uda się proces ten opisać uniwersalną funkcją matematyczną.

Autorzy składają podziękowania Profesorowi Andrzejowi Soleckiemu oraz anonimowemu Recenzentowi, których konstruktywne uwagi i sugestie odnośnie pierwotnej wersji manuskryptu spowodowały istotne rozbudowanie dyskusji oraz uzupełnienie brakujących informacji, dzięki temu wartość merytoryczna naszego artykułu znacząco wzrosła. Niewielka część prac terenowych oraz badania laboratoryjne były finansowane ze środków Politechniki Wrocławskiej, w ramach działalności badawczej Katedry Górnictwa na Wydziale Geoinżynierii, Górnictwa i Geologii.

LITERATURA

AL-HILAL M. 2020 – Radon as a natural radiotracer to investigate infiltration from surface water to nearby aquifers: a case study from the Barada riverbank, Syria. *Geofisica Inter.*, 59 (3): 208–223.
 BELLOTTI E., BROGGINI C., DI CARLO G., LAUBENSTEIN M., MENEGAZZO R. 2015 – Precise measurement of the ^{222}Rn half-life: A probe to monitor the stability of radioactivity. *Phys. Lett. B*, 743: 526–530.
 BERTIN C., BOURG A.C.M. 1994 – Radon-222 and chloride as natural tracers of the infiltration of river water into an alluvial aquifer in which

there is significant river/groundwater mixing. *Environ. Sci. Tech.*, 28 (5): 794–798.
 BURNETT W.C., DULAIOVA H. 2003 – Estimating the dynamics of groundwater input into the coastal zone via continuous radon-222 measurements. *J. Environ. Radioactiv.*, 69: 21–35.
 BURNETT W.C., DULAIOVA H. 2006 – Radon as a tracer of submarine groundwater discharge into a boat basin in Donnalucata, Sicily. *Contin. Shelf Res.*, 26: 862–873.
 BURNETT W.C., TANIGUCHI M., OBERDORFER J. 2001 – Measurement and significance of the direct discharge of groundwater into the coastal zone. *J. Sea Res.*, 46: 109–116.
 CABLE J.E., BUGNA G.C., BURNETT W.C., CHANTON J.P. 1996 – Application of ^{222}Rn and CH_4 for assessment of groundwater discharge to the coastal ocean. *Limnol. Oceanogr.*, 41 (6): 1347–1353.
 CABLE J.E., BURNETT W.C., CHANTON J.P., WEATHERLY G.L. 1996 – Estimating groundwater discharge into the northeastern Gulf of Mexico using radon-222. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 144: 591–604.
 COLLÉ R. 1995a – A precise determination of the ^{222}Rn half-life by $4\pi\text{-}\alpha\beta$ liquid scintillation measurements. *Radioactiv. Radiochem.*, 6 (1): 16–29.
 COLLÉ R. 1995b – Critically evaluated half-life for ^{222}Rn radioactive decay and associated uncertainties. *Radioactiv. Radiochem.*, 6 (1): 30–40.
 COOK P.G., DIGHTON J.C., LOVE A.J. 1999 – Inferring ground water flow in fractured rock from dissolved radon. *Ground Water*, 37 (4): 606–610.
 COOK P.G., FAVREAU G., DIGHTON J.C., TICKELL S. 2003 – Determining natural groundwater influx to a tropical river using radon, chlorofluorocarbons and ionic environmental tracers. *J. Hydrolog.*, 277: 74–88.
 CORBETT D.R., BURNETT W.C., CABLE P.H., CLARK S.B. 1997 – Radon tracing of groundwater input into Par Pond, Savannah River Site. *J. Hydrolog.*, 203: 209–227.
 CORBETT D.R., CHANTON J., BURNETT W., DILLON K., RUTKOWSKI Ch., FOURQUREAN J.W. 1999 – Patterns of groundwater discharge into Florida Bay. *Limnol. Oceanogr.*, 44 (4): 1045–1055.
 CYMERMAN Z. 1988 – Objasnienia do Szczegółowej Mapy Geologicznej Sudetów 1 : 25 000, ark. Strachocin i Bielice. *Wyd. Geol.*, Warszawa.
 CYMERMAN Z., CWOJDZIŃSKI S. 1986 – Szczegółowa Mapa Geologiczna Sudetów 1 : 25 000, ark. Strachocin i Bielice. *Wyd. Geol.*, Warszawa.
 DIMOVA N.T., BURNETT W.C., CHANTON J.P., CORBETT J.E. 2013 – Application of radon-222 to investigate groundwater discharge into small shallow lakes. *J. Hydrolog.*, 486: 112–122.
 DON J., OPLETAL M., 1996 – Budowa i ewolucja geologiczna Masywu Śnieżnika [W:] Jahn A., Kozłowski S., Pulina M. (red.), *Masyw Śnieżnika – zmiany w środowisku przyrodniczym*. *Wyd. Polskiej Agencji Ekologicznej*: 14–26.
 DON J., SKÁCEL J., GOTOWAŁA R. 2003 – The boundary zone of the East and West Sudetes on the 1 : 50 000 scale geological map of the Velké Vrbno, Staré Místo and Śnieżnik Metamorphic Units. *Geol. Sud.*, 35: 25–59.
 ELLINS K.K., ROMAN-MAS A., LEE R. 1990 – Using ^{222}Rn to examine groundwater/surface discharge interaction in the Rio Grande de Manati, Puerto Rico. *J. Hydrolog.*, 115: 319–341.
 FERREIRA V.V.M., FONSECA R.L.M., ROCHA Z., OLIVEIRA A.L., MOREIRA R.M., LEMOS N.C., CHAGAS C.J., MENEZES M.A.B.C., SANTOS T.O. 2015 – Use of Radon as Water Tracer at Juatuba Basin. *J. Geograph. Geol.*, 7 (3): 49–60.
 GIRAULT F., PERRIER F., PRZYLIBSKI T.A. 2018 – Radon-222 and radium-226 occurrence in water: a review. [W:] Gillmore G.K., Perrier F.E., Crockett R.G.M. (red.), *Radon, Health and Natural Hazards*. *Geol. Soc., Spec. Publ.*, 451: 131–154.
 GUNIA T. 1984 – Mikroskamieniałości z łupków kwarcytowych okolic Goszowa w masywie Śnieżnika Kłodzkiego (Sudety Środkowe). *Geol. Sud.*, 18 (2): 47–57.
 HAMADA H. 1999 – Analysis of the interaction between surface water and groundwater using radon-222. *JARQ*, 33 (4): 261–265.
 HOEHN E., von GUNTEN H.R. 1989 – Radon in groundwater: a tool to assess infiltration from surface waters to aquifers. *Water Resour. Res.*, 25 (8): 1795–1803.
 KIM G., HWANG D-W. 2002 – Tidal pumping of groundwater into the coastal ocean revealed from submarine ^{222}Rn and CH_4 monitoring. *Geophys. Res. Lett.*, 29 (14): 23–1 – 23–4.
 KIM J., CHOI H., KIM H., RYU J-S., KEE K-K. 2019 – Using isotopes (strontium and radon) and microbial communities to quantify groundwater mixing influenced by anthropogenic factors at riverside area. *J. Hydrolog.*, 581; <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2019.124441>
 KLUGE T., ILMBERGER J., ROHDEN C., AESCHBACH-HERTIG W. 2007 – Tracing and quantifying groundwater inflow into lakes using a simple method for radon-222 analysis. *Hydrolog. Earth Sys. Sci.*, 11: 1621–1631.
 L'ANNUNZIATA M.F. 2012 – *Handbook of Radioactivity Analysis*. Third edition. Elsevier Inc. Oxford, UK

- MACHINAL M. 2016 – Using naturally occurring radon 222 as a tracer to quantify groundwater fluxes to streams. Graduate Theses & Non-Theses, 82: 1–29.
- MILISZKIEWICZ A. 1978 – Radon. PWN, Wrocław.
- MOISE T., STARINSKY A., KATZ A., KOLODNY Y. 2000 – Ra isotopes and Rn in brines and ground waters of the Jordan-Dead Sea Rift Valley: Enrichment, retardation, and mixing. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 64 (14): 2371–2388.
- PRZYLIBSKI T.A. 2005 – Radon. Składnik swoisty wód leczniczych Sudetów. Oficyna Wydawnicza PWroc., Wrocław.
- PRZYLIBSKI T.A. 2011 – Shallow circulation groundwater – the main type of water containing hazardous radon concentration. *Nat. Hazard. Earth Sys. Sci.*, 11: 1695–1703.
- PRZYLIBSKI T., ZAGOŹDŹON K., ZAGOŹDŹON P. 2011 – Dependence of Rn-222 concentration changes in water of stream on the distance from the spring. *Geophys. Res. Abstracts*, 13, EGU2011-11774.
- REDLIŃSKA-MARZYŃSKA A., ŻELAŹNIEWICZ A., FANNING C.M. 2016 – An insight into a gneiss core of the Orlica-Śnieżnik Dome, NE Bohemian Massif: new structural and U-Pb zircon data. *Geol. Quart.*, 60 (3): 714–736.
- SADAT-NOORI M., ANIBAS C., ANDERSEN M.S., GLAMORE W., 2021 – A comparison of radon, heat tracer and head gradient methods to quantify surface water – groundwater exchange in a tidal wetland (Kooragang Island, Newcastle, Australia). *J. Hydrolog.*, 598; <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2021.126281>
- SCHMIDT A., STRINGER C.E., HAFERKORN U., SCHUBERT M., 2009 – Quantification of groundwater discharge into lakes using radon-222 as naturally occurring tracer. *Environ.Geol.*, 56: 855–863.
- STAŠKO S. 1996 – Wody podziemne w skałach krystalicznych na podstawie badań wybranych obszarów Sudetów polskich. *Acta Univ. Wratisl.*, 1870: 1–86.
- STAŠKO S., TARKA R. 2002 – Zasilanie i drenaż wód podziemnych w obszarach górskich na podstawie badań w Masywie Śnieżnika. *Acta Univ. Wratisl.*, 2528: 1–64.
- STRYDOM T., NEL J.M., NEL M., PETERSEN R.M., RAMJUKADH C.L. 2021 – The use of Radon (Rn222) isotopes to detect groundwater discharge in streams draining Table Mountain Group (TMG) aquifers. *Water SA*, 47 (2): 194–199.
- TOP Z., BRAND L.E., CORBETT R.D., BURNETT W., CHANTON J. 2001 – Helium and radon as tracers of groundwater input into Florida Bay. *J. Coastal Res.*, 17 (4): 859–868.
- WU Y., WEN X., ZHANG Y. 2004 – Analysis of the exchange of groundwater and river water by using Radon-222 in the middle Heihe Basin of northwestern China. *Environ. Geol.*, 45: 647–653.

Praca wpłynęła do redakcji 4.07.2022 r.

Akceptowano do druku 13.10.2022 r.