



**DANSK DEKOMMISSIONERING**

*Sektionen for Strålings- og Nuklear Sikkerhed*

*Per Hedemann Jensen*

*7. juni 2017*

## Radon-udsivning fra Kvanefjelds-malm på Risø-området og spredning i atmosfæren





# 1 Indledning

I 1980 blev der transporteret omkring 4 700 tons malm fra Kvanefjeldet i Grønland til Risø. Malmen blev anbragt på et område vest for de nuværende tailingsbassiner, og på området ligger der stadig ca. 4 000 tons uforarbejdet malm, som vist på figur 1.



Figur 1. Bunker af Kvanefjelds-malm på Risø-området. Græs og anden vegetation vokser direkte i malmbunkerne.

Malmen indeholder kun små mængder af naturligt forekommende radionuklider, og det vil derfor ikke være hensigtsmæssigt at placere malmen i et dansk slutdepot for radioaktivt affald.

Aktivitetskoncentrationen,  $q$ , af  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  og  $^{238}\text{U}$  i Kvanefjelds-malm kan beregnes ud fra koncentrationen af uran og thorium i malmen,  $C$ , nuklidernes specifikke aktivitet,  $S$ , og deres naturlige forekomst,  $f$ :

$$q = C \cdot S \cdot f$$

Koncentrationen,  $C$ , af thorium og uran i malmen er henholdsvis 1 270 ppm og 470 ppm. I tabel 1 er vist værdierne af  $S$  og  $f$  samt de beregnede værdier af aktivitetskoncentrationen,  $q$ , i malmen af de enkelte radionuklider [1].

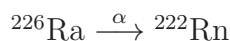
Tabel 1. Specifik aktivitet,  $S$ , af de tilstedeværende radionuklider i malmen fra Kvanefjeldet i Sydgrønland, deres naturlige forekomst,  $f$ , og aktivitetskoncentrationen,  $q$ , af disse nuklider.

Radionuklid	$S$ (Bq/kg)	$f$ (%)	$q$ (Bq/kg)
$^{232}\text{Th}$	$4.07 \cdot 10^6$	100.00	$5.17 \cdot 10^3$
$^{235}\text{U}$	$8.04 \cdot 10^7$	0.7204	$2.72 \cdot 10^2$
$^{238}\text{U}$	$1.24 \cdot 10^7$	99.2742	$5.79 \cdot 10^3$

Det fremgår af tabel 1, at aktivitetskoncentrationen,  $q$ , af radionukliderne  $^{232}\text{Th}$  og  $^{238}\text{U}$  i malmen stort set er lige store.

## 2 Udsivning af $^{222}\text{Rn}$ fra uranpartikler

Radonkoncentrationen ( $^{222}\text{Rn}$ ) i udendørs luft i Danmark er typisk 5 - 10 Bq/m<sup>3</sup>. Kilden hertil er forekomsten af uranpartikler i jorden med en gennemsnitlig koncentration på 1.4 ppm [2]. Radon dannes ved henfald af  $^{226}\text{Ra}$  i  $^{238}\text{U}$ -henfaldskæden:



Den typiske radon-koncentration i jordluften er 50 000 Bq/m<sup>3</sup>, og radon diffunderer herfra til atmosfæren.

### 2.1 Radon-udsivning fra Kvanefjelds-malm og tailings

Koncentrationen af  $^{226}\text{Ra}$  i Kvanefjelds-malmen (i ligevægt med  $^{238}\text{U}$ ) er  $5.79 \cdot 10^3$  Bq/kg, jævnfør tabel 1. I 4000 tons malm er  $^{226}\text{Ra}$ -aktiviteten,  $Q_{\text{Ra}}$ , i alt 23 GBq, og der dannes derfor  $23 \cdot 10^9$   $^{222}\text{Rn}$ -atomkerner i malmen pr. sekund.



Figur 2. Luftfoto af Risø-området med tailingsbassiner og malmbunker fra Kvanefjeldet. Målestokken er angivet ved den røde linie med længden 10 meter.

Udsivningen af  $^{222}\text{Rn}$ -aktivitet pr. tidsenhed fra bunkerne af Kvanefjelds-malm vist på figur 2 kan således beregnes som:

$$\dot{Q}_{\text{Rn}} = \lambda_{\text{Rn}} \cdot f \cdot Q_{\text{Ra}}$$

hvor:

- $\lambda_{\text{Rn}}$  er henfaldskonstanten for  $^{222}\text{Rn}$
- $f$  er radon emanations-fraktionen for malmen (defineret som antallet af radon-atomer frigjort fra materialet pr. radon-atomer dannet)
- $Q_{\text{Ra}}$  er den samlede  $^{226}\text{Ra}$ -aktivitet i malmbunkerne

I ref. [3] er der foretaget en række eksperimentelle bestemmelser af emanationsfraktionen,  $f$ , for klippemateriale og jord. For klippemateriale blev fraktionen

bestemt til 0.026 - 0.046. I det efterfølgende er anvendt en værdi af  $f$  på 0.05, der er den største værdi af de eksperimentelt bestemte værdier. Indsættes værdierne i ovenstående udtryk bliver udsivningsraten af radon fra malmbunkerne følgende:

$$\begin{aligned}\dot{Q}_{\text{Rn}} &= \frac{\ln(2)}{3.82 \cdot 24 \cdot 3600} \cdot 0.05 \cdot 23 \cdot 10^9 \\ &= \underline{2400 \text{ Bq} \cdot \text{s}^{-1}}\end{aligned}$$

I ref. [4] findes et omfattende review af radon-emanations-målinger for mineraler, klippemateriale, jord, tailings og flyveaske. For tailings er emanations-fraktionen bestemt til 0.17, dvs. af samme størrelsesorden som for tør jord [5].

I tailingsbassinerne er der ca. 600 m<sup>2</sup> tailings svarende til omkring 1000 tons. Antages det konservativt, at urankoncentrationen er den samme som i de 4000 tons malm, vil udsivningsraten af radon fra tørlagte tailings-bunker blive af størrelsesordenen:

$$\begin{aligned}\dot{Q}_{\text{Rn-tailings}} &= \dot{Q}_{\text{Rn}} \cdot \frac{f_{\text{tailings}}}{f_{\text{malm}}} \cdot \frac{M_{\text{tailings}}}{M_{\text{malm}}} \\ &= 2400 \cdot \frac{0.17}{0.05} \cdot \frac{1000}{4000} \\ &\cong \underline{2000 \text{ Bq} \cdot \text{s}^{-1}}\end{aligned}$$

Udsivningsraten fra tørlagte tailings-bunker er således af samme størrelse som fra malmbunkerne. Spørgsmålet er derfor, om bassinerne behøver at være vandfyldte.

## 2.2 Radon-udsivning fra en halv-uendelig kilde af jord

Den væsentlige mekanisme til udsivning af radon til atmosfæren er gasdiffusion. UNSCEAR har i sine 1988- og 1993-rapporter angivet et udtryk for udsivningsraten til atmosfæren [5]. For en porøs masse af homogent materiale med en halv-uendelig udtrækning (horisontalt og vertikalt) kan fluxtætheden ( $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) af radon ved overfladen af tør jord,  $J_D$ , beregnes af [5]:

$$J_D = C_{\text{Ra}} \cdot \lambda_{\text{Rn}} \cdot f \cdot \rho_s \cdot (1 - \varepsilon) \cdot L$$

hvor:

- $C_{\text{Ra}}$  er aktivitetskoncentrationen af <sup>226</sup>Ra i jordmaterialet
- $\lambda_{\text{Rn}}$  er henfaldskonstanten for <sup>222</sup>Rn
- $f$  er radon emanations-fraktionen for materialet
- $\rho_s$  er densiteten af jordpartiklerne
- $\varepsilon$  er porøsiteten af tørt jordmateriale
- $L$  er diffusionslængden ( $= \sqrt{D_e/\lambda_{\text{Rn}}}$ )

Udtrykket gælder kun for tørt materiale, idet tilstedeværelsen af vand vil ændre transportbetingelserne, så mindre radon vil sive ud.

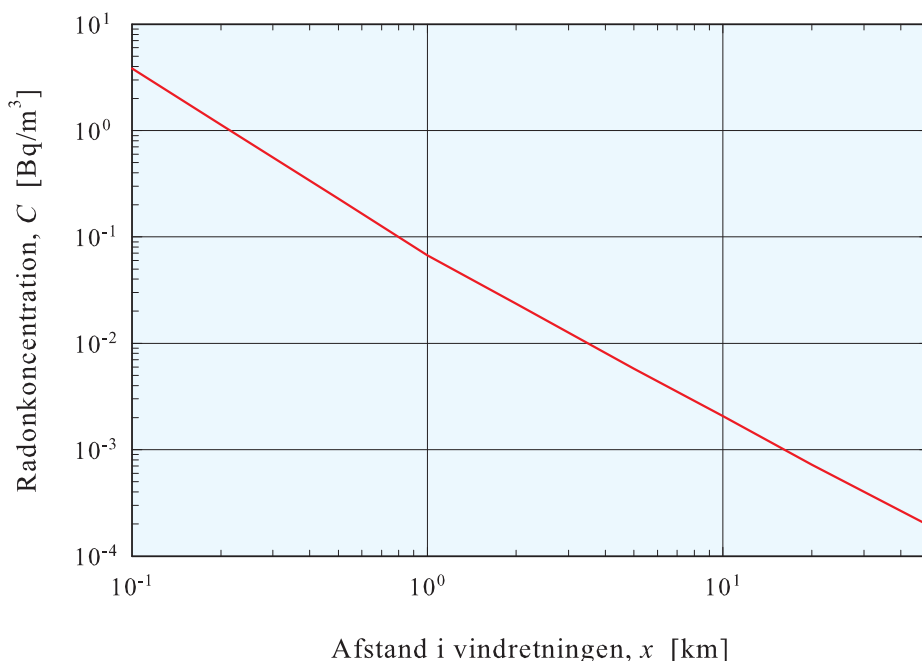
UNSCEAR har beregnet  $J_D$  til  $0.033 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  for typiske værdier af de ovennævnte parametre ( $C_{\text{Ra}} = 40 \text{ Bq/kg}$ ,  $\lambda_{\text{Rn}} = 2.1\cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ,  $f = 0.2$ ,  $\rho_s = 2700 \text{ kg/m}^3$ ,  $\varepsilon = 0.25$  og  $D_e = 2\cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ ), hvilket er i nogenlunde overensstemmelse med målte værdier [5]. En typisk fluxtæthed af radon ved jordoverfladen er  $1.6\cdot 10^{-2} \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  (world-wide average) [5, 6].

Det betyder, at udsivningen af  $^{222}\text{Rn}$  pr. tidsenhed,  $\dot{Q}_{\text{Rn}}$ , fra Kvanefjeldsmalmen på  $2400 \text{ Bq/s}$  svarer til udsivningen fra almindelig dansk jord med en udstrækning på omkring  $73\,000 \text{ m}^2$ :

$$\begin{aligned} A_{\text{jord}} &= \dot{Q}_{\text{Rn}}/J_D \\ &= 2400/0.033 \\ &\cong \underline{\underline{270 \text{ m} \times 270 \text{ m}}} \end{aligned}$$

### 3 Atmosfærisk spredning af udsivet radon

Radioaktive stoffer, der frigøres til atmosfæren, vil af vinden blive ført væk fra udslipspunktet på samme måde som røgen fra en skorsten. Det er velkendt, at røgfanen fra en skorsten kan antage en række forskellige former alt afhængig af vejrforhold og tidspunkt på dagen [7].



Figur 3. Forøget radon-koncentration i udendørsluft én meter over jordoverfladen som funktion af afstanden fra bunkerne af Kvanefjeldsmalm ved en udsivningshastighed på  $2400 \text{ Bq/s}$  af  $^{222}\text{Rn}$  fra malmbunkerne.

Det simpleste billede af den atmosfæriske transportmekanisme er en vandret fane, der består af frigjort luftbåret materiale, og som følger vindens retning. Den lod-



rette og vandrette dimension af fanen vil vokse med stigende afstand fra udslipspunktet på grund af turbulent opblanding med den omgivende luft. Fanen har form som et "kræmmerhus" (konus).

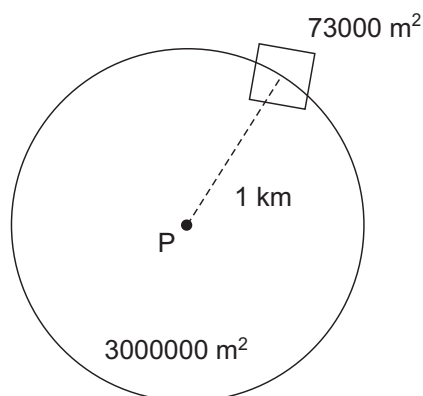
Tidsmiddelværdien af koncentrationen kan beskrives ved en simpel matematisk spredningsmodel, den såkaldte *gauss-model*. Modellen beskriver koncentrationen,  $C$ , som funktion af koordinaterne  $x, y, z$  i et koordinatsystem med nulpunkt i udslipspunktet med  $x$ -aksen i vindretningen,  $y$ -aksen i vandret tværvindsretning og  $z$ -aksen i lodret retning.

I "røgfanen" vil koncentrationen af de frigjorte stoffer hovedsageligt være bestemt af mængden af frigjort materiale pr. tidsenhed, afstanden fra frigørelsespunktet, vindhastigheden og turbulensen. På samme måde vil radon, der diffunderer fra Kvanefjeldsmalmen til atmosfæren, blive fortyndet, efterhånden som den spredes med vinden.

På figur 3 er vist radon-koncentrationen i luft én meter over jordoverfladen som funktion af afstanden i vindretningen fra bunkerne af Kvanefjeldsmalm under neutrale atmosfæriske stabilitetsforhold, der optræder i 60 - 80% af tiden i Danmark, og en vindhastighed på 5 m/s.

Det fremgår af figur 3, at i en afstand på omkring 1 kilometer fra malmbunkerne i vindretningen (f.eks. Risø Huse og Veddelev) er radon-koncentrationen i luften rundt regnet 1% af den naturligt forekommende udendørs radonkoncentration. Da vindretningen ikke er konstant over tid, vil middelkoncentrationen over et år i samme afstand være af størrelsesordenen 0.1% af den naturligt forekommende radonkoncentration udendørs.

Udsivning af radon fra malmen svarer, jf. afsnit 2.2, til udsivning af radon fra 73 000 m<sup>2</sup> dansk jord. For et fast referencepunkt, P, i en afstand på 1 km fra malmbunkerne vil malmen kun bidrage med udendørs radonkoncentration i punktet P, når vindretningen er fra malmbunkerne mod P. Med andre vindretninger vil der komme bidrag fra dele af det cirkulære jordareal omkring P, men ikke fra malmbunkerne. Over lang tid vil bidraget til radonkoncentrationen i punktet P fra det cirkulære jordareal i gennemsnit være omkring 40 gange bidraget fra malmbunkerne, jf. figur 4.



Figur 4. Sammenligning af udsivningsraten af radon fra Kvanefjeldsmalm, der er ækvivalent med et jordareal på 73 000 m<sup>2</sup>, og udsivningsraten fra et cirkelformet jordareal med en radius på 1 kilometer og et areal på godt 3 millioner m<sup>2</sup>.

Radon-udsivningsraten fra malmen udgør omkring 2 - 3% af radonudsivningsraten fra et cirkulært jordareal med en radius på 1 km. Antages en homogen vindretningsfordeling omkring punktet P, svarer radon-bidraget i punktet P fra malmen midlet over tid til omkring 0.2% af radon-bidraget fra hele jordarealet.

I praksis vil radon-udsivningen fra jordarealer tættere på P bidrage relativt mere end radon-udsivningen fra malmen, og der vil også være bidrag fra jordarealer i afstande større end 1 kilometer fra P. Det gennemsnitlige, relative bidrag fra malmen til radonkoncentrationen i punktet P vil derfor være meget mindre end 0.2% af bidraget fra de omgivende jordarealer.

## 4 Konklusioner

Udsivningen af radon til atmosfæren fra 4000 tons Kvanefjelds-malm på Risø-området udgør ikke noget miljøproblem for omgivelserne. Tæt på malmbunkerne er den gennemsnitlige årlige koncentration af udsivende radon i luften rundt regnet af samme størrelsesorden som den naturligt forekommende radonkoncentration i udendørs luft fra udsivende radon i jorden.

Koncentrationen af radon i luft fra udsivningen fra malmbunkerne falder med afstanden fra malmbunkerne som følge af spredning i atmosfæren. I en afstand på 1 km fra malmbunkerne er koncentrationen i luften i vindretningen omkring 1% af den naturligt forekommende radonkoncentration i udendørs luft. Den gennemsnitlige årlige koncentration i samme afstand er omkring 0.1% af den naturligt forekommende radonkoncentration i udendørs luft.

Hvis tailingsbassinerne blev tørlagte, ville udsivningsraten af radon til atmosfæren fra bassinerne være af samme størrelse som fra malmbunkerne. Derfor vil tørlagte tailingsbassiner heller ikke udgøre noget miljøproblem for omgivelserne.



# Litteratur

1. Hedemann Jensen, P., *Helsefysisk miljøvurdering - Brug af sydgrønlandsk uranmalm som vejfyld under danske veje*. DD-R-25(DA), Dansk Dekommissionering, Roskilde (2014).
2. Nielsen, S. P., *Personlig kommunikation*. DTU Nutech (2013).
3. Sakoda, A., Nishiyama, Y., Hanamoto, K., Ishimori, Y., Yamamoto, Y., Katoka, T., Kawabe, A., Yamaoka, K., *Differences of natural radioactivity and radon emanation fraction among constituent minerals of rock or soil*. Applied Radiation and Isotopes 68, 1180 - 1184 (2010).
4. Sakoda, A., Ishimori, Y., Yamaoka, K., *A comprehensive review of radon emanation measurements for mineral, rock, soil, mill tailing and fly ash*. Applied Radiation and Isotopes, 69, 1422 - 1435 (2011).
5. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAR 2000 Report. *Sources and Effects of Ionising Radiation*. Volume I: Sources. Report to the General Assembly with Scientific Annexes. United Nations, New York, 2000. Nazaroff, W.W., Nero Jr., A.V., *Radon and its decay products in indoor air*. John Wiley & Sons Inc. (1988).
6. Nazaroff, W.W., Nero Jr., A.V., *Radon and its decay products in indoor air*. John Wiley & Sons Inc. (1988).
7. Hedemann Jensen, P., Lauridsen, B., Søgaaard-Hansen, J., Thorn, E., Warming, L., *Almen helsefysik - Konsekvenser af radioaktive udslip*. DD-R-12(DA), Dansk Dekommissionering, Roskilde (2005).