

**Flussi di calore sensibile e Radon dal suolo ottenuti da misure nello strato limite dell'atmosfera**

Natalia De Luca <sup>(a)</sup>, Gabriele Curci <sup>(a,b)</sup>, Giovanni Pitari <sup>(a)</sup>,

<sup>(a)</sup> Dipartimento di Scienze Fisiche e Chimiche, Università dell'Aquila, Via Vetoio, 67010 Coppito, L'Aquila, Italy

<sup>(b)</sup> Centro di Eccellenza CETEMPS, Università dell'Aquila, Via Vetoio, 67010 Coppito, L'Aquila, Italy

**Abstract**

Viene descritto un metodo analitico per la determinazione dei flussi di radon dal suolo partendo da misure di concentrazione del gas nello strato limite dell'atmosfera e da misure standard di parametri meteorologici ad un singolo livello verticale nello strato limite atmosferico. Vengono discussi i vantaggi di un tecnica basata su dati acquisiti in atmosfera in una singola stazione di osservazione, presso il Dipartimento di Scienze Fisiche e Chimiche dell'Università dell'Aquila. La stima affidabile del flusso di radon dalla superficie è il prerequisito fondamentale per il monitoraggio di eventuali perturbazioni naturali sporadiche nella concentrazione del gas nel suolo e per eventuali misure preventive da adottare in siti rilevati come inquinati da radon.

**Introduzione**

Il Radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) è un gas nobile radioattivo emesso dal suolo con un tempo di vita medio di 5.517 giorni. Il tasso di emissione è di circa  $1 \text{ atomo-Rn}/\text{cm}^2 \text{ s}^{-1}$  in siti continentali ed è prossimo allo zero sull'oceano e su superfici coperte da neve o ghiaccio (Zahorowski et al. 2013). Il decadimento radioattivo rappresenta la principale perdita in atmosfera su scala globale, mentre le variazioni locali sono controllate dal tasso di emissione dal suolo e dal mescolamento verticale convettivo negli strati più bassi dell'atmosfera. Per questo il radon può essere considerato un tracciante naturale dei moti dello strato limite atmosferico (Williams et al. 2013). Anche l'umidità del suolo può modulare l'emissione di radon (Galmarini 2006) e a volte l'attività sismica può influenzare la concentrazione locale del gas (Cicerone et al., 2009).

Il trasporto verticale è strettamente correlato con la stabilità atmosferica: l'atmosfera è tipicamente instabile durante le ore diurne, quando la superficie terrestre è scaldata dalla radiazione solare e i moti convettivi mescolano efficacemente l'aria diluendo gli inquinanti di origine antropica e naturale ( $\text{NO}_x$ , CO, VOC, PM, Rn) in uno strato di mescolamento di altezza caratteristica di 1-1.5 km al di sopra della superficie. Di notte, invece, l'atmosfera è di solito molto stabile e stratificata e favorisce l'accumulo degli inquinanti in uno strato di mescolamento molto sottile al di sopra della superficie (poche decine di metri) e caratterizzato da forte inversione termica (tipicamente  $dT/dz > 0.02 \text{ K/m}$ ). Per questo il radon tende ad accumularsi nello strato limite notturno, raggiungendo le massime concentrazioni prima dell'alba, tranne nei casi in cui le condizioni meteorologiche lo rendono instabile, impedendo la formazione dell'inversione termica. Di conseguenza il radon presenta un ciclo giornaliero con un minimo nelle ore diurne (moti convettivi intensi) e un massimo nelle ore notturne (tranne che in casi di instabilità meteorologica). Il principale fattore di regolazione dell'abbondanza del radon in atmosfera è

dunque la diluizione dinamica. Un'evidenza indiretta di ciò è l'anti-correlazione del radon con la velocità del vento e l'ozono (Di Carlo et al., 2007): quest'ultimo, almeno in siti con limitata produzione fotochimica, è modulato nello strato limite dal mixing verticale, ma la sua principale riserva è situata negli strati alti dell'atmosfera invece che al suolo.

Lo studio della concentrazione di radon in atmosfera è importante perché, secondo recenti stime dell'EPA, esso rappresenta la principale causa di tumore al polmone nei non fumatori (ogni anno causa circa 21000 morti nel mondo) (fonte EPA). Se si considera l'esposizione totale a radiazioni ionizzanti (escluso l'ambiente sanitario), i prodotti del decadimento radioattivo del radon sono responsabili di circa la metà di questa esposizione. Il Radon-222 decade emettendo progenie radioattiva solida a vita breve (Polonio, Bismuto) che può legarsi agli aerosol atmosferici. Se inalati, possono depositarsi nell'epitelio bronchiale esponendo quindi le cellule alla radiazione  $\alpha$ , proveniente principalmente dal Polonio-218 e dal Polonio-214 (Al-Zoughool and Krewski 2009).

Un box model numerico è stato sviluppato per comprendere meglio i meccanismi che regolano la variabilità diurna e stagionale del radon nello strato limite atmosferico e per valutarne indirettamente il flusso medio mensile dal suolo. La tecnica discussa in Pitari et al. (2014) è stata migliorata introducendo nel calcolo la tendenza al suolo della temperatura potenziale ed il flusso di calore sensibile. La stima corretta del flusso di radon rende possibile evidenziare eventuali perturbazioni sporadiche nell'emissione del gas (per esempio in relazione ad attività sismica) o valori locali più alti della media per particolari caratteristiche geologiche del suolo.

### Metodo per la determinazione del flusso di Radon dal suolo

Misure outdoor di radon, collezionate dal 2004 in poi nel sito dell'Aquila, sono qui discusse con l'ausilio di un box model numerico guidato da dati meteorologici disponibili nel sito stesso. Le misure sono state effettuate con un analizzatore "PRASSI Silena 5S" a cella di scintillazione (cella di Lucas), la cui parete è ricoperta da solfuro di zinco. Tale sostanza, dopo l'interazione con una particella  $\alpha$ , emette un fotone, in seguito amplificato e convertito in impulso elettrico da un fotomoltiplicatore. In questo modo il decadimento radioattivo può essere "contato" e, dopo un processo di calibrazione, convertito in concentrazione di gas radon in  $\text{Bq/m}^3$ .

La serie temporale delle misure di concentrazione di radon è stata utilizzata per ottenere indirettamente il flusso dal suolo medio mensile e la sua incertezza statistica. La tendenza temporale del radon in prossimità della superficie terrestre ( $d\chi/dt$ ) è controllata dal bilancio dei termini di sorgente e perdita, mediante la seguente equazione di continuità (Pitari et al. 2014):

$$d\chi/dt = -1/n_a d\Phi/dz - (L_{\text{mix}} + L_{\text{decay}}) \chi \quad \text{Eq. (1)}$$

L' Eq. (1) è applicata ad altezza  $\Delta z/2$  rispetto alla superficie dove è posizionato lo strumento di misura del radon (circa 20m);  $\Phi$  è il flusso di emissione dal suolo,  $-1/n_a d\Phi/dz$  la divergenza del flusso,  $n_a$  la concentrazione numerica dell'atmosfera e  $\chi$  è il rapporto di mescolamento del radon.  $L_{\text{mix}}$  è la frequenza di rimozione del tracciante dovuta al mixing verticale nello strato limite atmosferico e  $L_{\text{decay}}$  è la frequenza di rimozione irreversibile dovuta al decadimento radioattivo (di solito piccola rispetto a  $L_{\text{mix}}$  durante il giorno). Operando in condizioni dinamiche per cui  $L_{\text{mix}} \sim 0$  (cioè durante le notti stabili), il flusso di radon è facilmente ottenibile dalla Eq. (1) una volta che la tendenza  $d\chi/dt$  è nota dalle misure. Durante le notti selezionate con  $L_{\text{mix}} \rightarrow 0$  (condizioni di inversione termica al suolo, con velocità del vento al di sotto di una soglia prefissata, 0.6 m/s), la tendenza notturna del radon viene calcolata come la pendenza media della curva di accumulo del radon fra le ore 20 e le 6 del mattino seguente. Questa pendenza (espressa in  $\text{Bq/m}^3 \text{ s}^{-1}$ ) viene quindi moltiplicata per  $\Delta z$  per

ottenere  $\Phi$  in  $\text{mBq m}^{-2} \text{s}^{-1}$ . Una volta determinato il flusso medio mensile  $\Phi$ , l' Eq. (1) può anche essere usata per calcolare  $\chi(t)$ , noto  $L_{\text{mix}}$  mediante parametrizzazione in funzione della divergenza di un flusso diffusivo verticale, con coefficiente  $K_z$  vincolato ai valori orari osservati di temperatura e velocità del vento. Esempi dell'uso di Eq.(1) e del modello a scatola sono mostrati in Fig. 1.

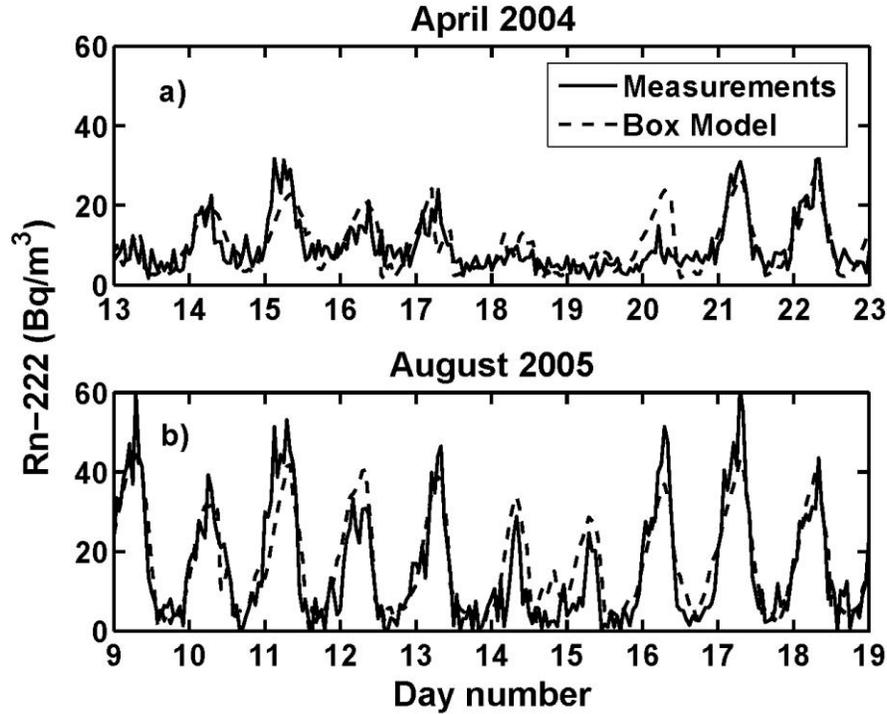


Fig.1. Esempi di serie temporale di Rn, misurato e calcolato, per Aprile 2004 (a) e Agosto 2005 (b).

I buoni risultati del modello sono in parte il risultato di un ragionevole equilibrio fra i valori calcolati del flusso medio mensile di radon dal suolo e dell'efficienza di diluizione nello strato limite, che in alcuni casi (vedi i giorni 18 e 19 di Aprile 2004 in Fig. 1a) determina anche assenza di accumulo notturno del gas. A parità di flusso, la causa di queste “anomalie notturne” sono valori elevati di  $L_{\text{mix}}$  associati a velocità del vento oltre il valore prefissato di soglia, usato come indicatore di stabilità notturna ed inversione termica in superficie. Tuttavia non c'è assoluta garanzia che il valore calcolato di  $\Phi$  sia del tutto corretto. Per questo è stato messo a punto un metodo più attendibile per valutare l'altezza dello strato di inversione termica, che invece nell'approccio di Eq. (1) viene mantenuta costante. Si considera l'espressione seguente del calore sensibile  $H(t)$ , in funzione del gradiente verticale della temperatura potenziale  $\theta(z,t)$ , con  $\rho$  densità in massa dell'atmosfera,  $C_p$  calore specifico a pressione costante e  $K_z$  coefficiente di diffusione verticale (Stull, 1988):

$$H(t) = -\rho C_p K_z \frac{d\theta}{dz} \quad \text{Eq. (2)}$$

L'equazione per l'evoluzione notturna del radon è costruita seguendo Li (1974): la tendenza  $d\chi/dt$  può essere legata al flusso di radon  $\Phi$ , al gradiente verticale di temperatura potenziale  $d\theta/dz$  e alla sua tendenza temporale notturna  $d\theta/dt$ :

$$d\chi/dt = 1/n_a \rho C_p / H(t) \Phi(t) \frac{d\theta}{dt} \quad \text{Eq. (3)}$$

Dalle Eq. (2) e (3) si può ricavare il flusso  $\Phi$  in funzione del gradiente verticale della temperatura potenziale e delle tendenze temporali di quest'ultima e di radon:

$$\Phi(t) = n_a d\chi/dt H(t)/(\rho C_p) (d\theta/dt)^{-1} = -n_a d\chi/dt K_z d\theta/dz (d\theta/dt)^{-1} \quad \text{Eq. (4)}$$

L'Eq. (4) necessita della stima del flusso di calore sensibile  $H(t)$  o del gradiente verticale di temperatura potenziale  $d\theta/dz$ . Queste grandezze possono essere a rigore stimate da misure della temperatura ad almeno due quote nello strato limite. Tuttavia l'informazione verticale non è di solito disponibile; sono state perciò sviluppate parametrizzazioni che permettono la loro stima a partire solo da misure al suolo. Quella adottata qui è descritta in Holtslag e de Bruin (1988) e si basa su misure a una singola quota di temperatura, umidità e velocità del vento. Il metodo consiste nella soluzione numerica del bilancio energetico in prossimità della superficie, cercando iterativamente un valore ottimale della lunghezza di scala di Obukhov (grandezza che esprime il rapporto tra la turbolenza meccanica e quella per galleggiamento). I risultati per gli anni 2004/2005 sono mostrati in Fig. 2. Per ogni notte, selezionata tra quelle con scarsa copertura nuvolosa,  $n_a d\chi/dt > 1 \text{ Bq/m}^3/\text{h}$ ,  $v < 0.7 \text{ m/s}$  e  $d\theta/dt < -0.5 \text{ K/h}$ , sono mostrati i valori del flusso di radon utilizzando il valore stimato di  $H(t)$ . Mediando su un arco di tempo stagionale si ottiene un valore di  $\Phi = 10.5 \pm 8.0 \text{ mBq/m}^2/\text{s}$  per i mesi da Aprile a Settembre. La grande deviazione standard è sintomo della forte incertezza intrinseca nel metodo, difficilmente riducibile senza misure dirette del gradiente verticale di temperatura. Questo valore può essere confrontato con quello ottenuto direttamente dall'Eq. (1), ma con altezza fissa dello strato di inversione termica:  $\Phi = 9.0 \pm 6.0 \text{ mBq/m}^2/\text{s}$ .

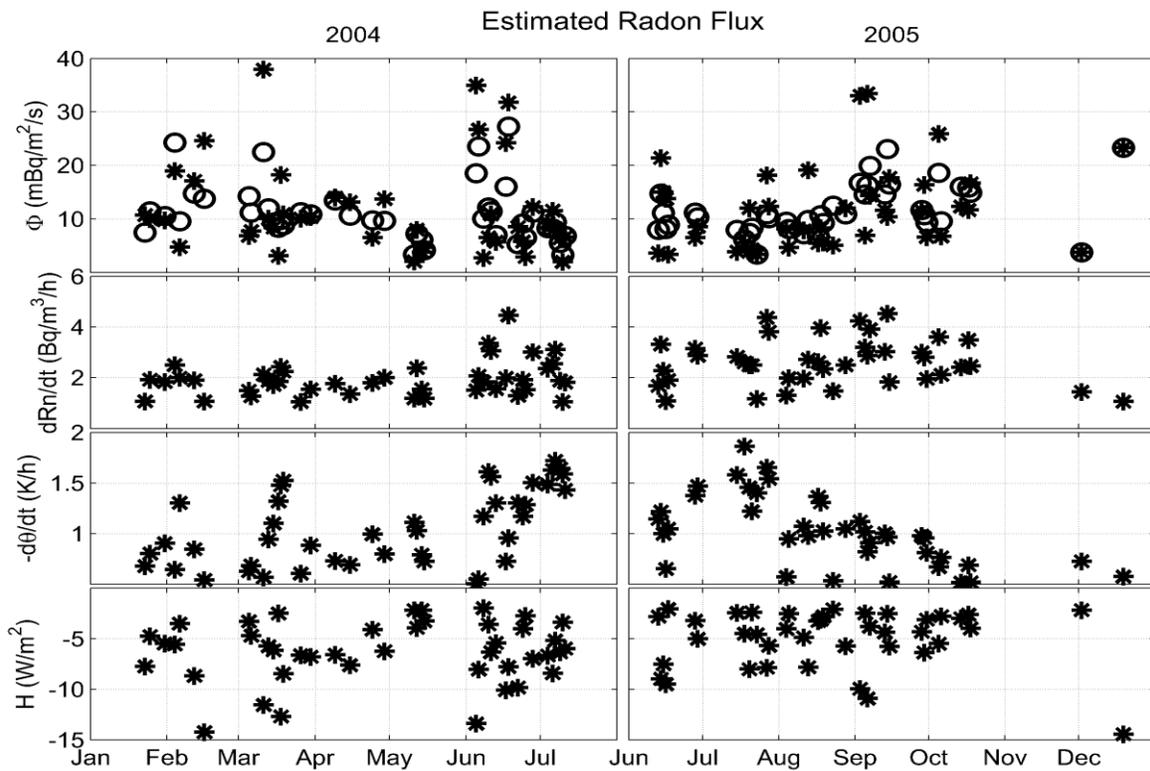


Fig. 2. Flussi di radon e calore sensibile stimati da misure a una singola quota di parametri meteo e concentrazione di radon (2004/05). I pannelli centrali sono relativi alle tendenze temporali notturne di radon e temperatura potenziale, sui giorni selezionati (criteri di stabilità atmosferica). I cerchi sono relativi a valori di  $\Phi$  calcolati da flussi di calore  $H$  ottenuti con medie correnti di 15 giorni.

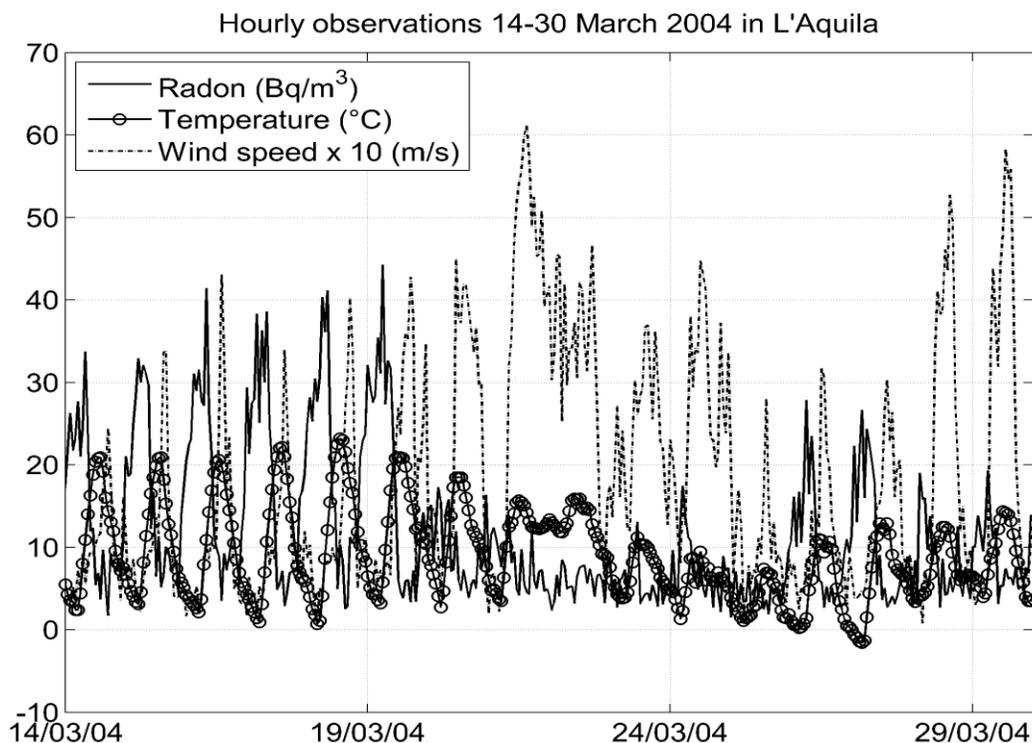


Fig. 3. Serie temporali sovrapposte di radon ( $\text{Bq/m}^3$ ), velocità del vento ( $\text{dm/s}$ ) e temperatura ( $^{\circ}\text{C}$ ), dal 14 al 30 Marzo 2004.

La guida dinamica all'accumulo notturno di radon è evidente dalla serie temporale in Fig. 3. I picchi di  $20\text{-}40 \text{ Bq/m}^3$  si hanno solo quando la diluizione dinamica nello strato limite notturno è limitata da condizioni di pronunciata stabilità atmosferica, caratterizzata da valori molto bassi del vento ( $<0.7 \text{ m/s}$ ) e da diminuzione notturna della temperatura con un gradiente in modulo non inferiore a  $0.5 \text{ K/h}$ . Si noti come nei giorni dal 20 al 25 Marzo tali condizioni non siano mai simultaneamente verificate, impedendo un chiaro accumulo notturno del radon.

Il vantaggio del metodo descritto è di sfruttare misure in outdoor di radon e quindi non potenzialmente falsate da incontrollate condizioni di ventilazione o da errori sistematici legati ad un non perfetto isolamento di un sito indoor. Le condizioni notturne sono perfette per risalire al flusso, ma solo nell'ipotesi di almeno due misure di radon e/o temperatura in verticale, per risalire ai gradienti verticali. Il metodo qui proposto permette di utilizzare misure ad un singolo livello verticale, mediante calcolo del flusso di calore sensibile da dati meteo.

Come accennato nell'introduzione, la concentrazione locale di radon può essere influenzata non solo dalle condizioni meteorologiche ma anche da perturbazioni nelle condizioni fisiche del suolo; è stata anche occasionalmente correlata con eventi sismici. Abbiamo pertanto calcolato il flusso medio mensile di radon nel mese di Marzo 2009, ovvero il mese precedente all'evento sismico che ha colpito la città dell'Aquila il 6 Aprile 2009, con quello calcolato per Marzo 2004. Con la metodologia qui illustrata il flusso di Marzo 2009 risulta essere pari a  $\Phi = 7.5 \pm 5.0 \text{ mBq/m}^2/\text{s}$ , mentre quello di Marzo 2004 pari a  $\Phi = 12.0 \pm 10 \text{ mBq/m}^2/\text{s}$ . Nell'ambito della significativa incertezza statistica del metodo, non vengono evidenziate anomalie del flusso di radon nel mese precedente il sisma dell'Aquila, rispetto a quello di uno stesso periodo di un anno precedente "sismicamente-imperturbato". Questo può essere considerato un buon esempio di applicabilità del

metodo fin qui descritto di stima del flusso di radon dal suolo, partendo da misure in atmosfera ad un singolo livello verticale in prossimità della superficie, utilizzando un singolo strumento di misura.

## **Conclusioni**

Sono stati presentati alcuni risultati dell'attività di monitoraggio nella stazione di misura dell'Università dell'Aquila, in relazione alla concentrazione di radon nello strato limite dell'atmosfera. Si è discussa una tecnica analitica da applicare al trend notturno di radon insieme con dati meteo acquisiti simultaneamente. L'utilizzo dei flussi di calore sensibile notturno e della tendenza notturna della temperatura potenziale permette di risalire in modo affidabile dai dati di concentrazione al flusso di radon dal suolo. Una stima corretta di tale flusso è prerequisito fondamentale per eventuali strategie preventive da adottare in siti rilevati come inquinati da radon o per potenziali perturbazioni naturali sporadiche (precursore sismico?).

## **Bibliografia**

- Al-Zoughool, M. and D. Krewski: Health effects of radon: A review of the literature, *Int. J. Radiat. Biol.*, *85*, 57-69, 2009.
- Cicerone, R.D., J.E. Ebel, and J. Britton: A systematic compilation of earthquake precursors, *Tectonophysics*, *476*, 371-396, 2009.
- Di Carlo, P., G. Pitari, E. Mancini, S. Gentile, E. Pichelli and G. Visconti: Evolution of surface ozone in central Italy based on observations and statistical model, *J. Geophys. Res.*, *112*, 10316-10330, doi:10.1029/2006JD007900, 2007.
- Galmarini, S.: One year of 222-Rn concentration in the atmospheric surface layer, *Atmos. Chem. Phys.*, *6*, 2865-2887, 2006.
- Holtslag, A. A. M, and H. A. R. de Bruin: Applied modeling of the nighttime surface energy balance over land, *J. Appl. Meteor.*, *27*, 689-704, 1988.
- Li, T.-Y.:Diurnal variations of radon and meteorological variables near the ground, *Bound. Layer Meteorol.*, *7*, 185-198, 1974.
- Pitari, G., E. Coppari, N. De Luca and P. Di Carlo: Observations and box-model analysis of Radon-222 in the atmospheric surface layer at L'Aquila, Italy: March 2009 case study, *Environ. Earth Sci.*, *71*, 2353-2359, doi:10.1007/s12665-013-2635-1., 2014.
- Stull, R.B.: An introduction to boundary layer meteorology, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 666 pp, 1988.
- Williams, A.G., S.D. Chambers and A. Griffiths: Bulk Mixing and Decoupling of the Nocturnal Stable Boundary Layer Characterized Using a Ubiquitous Natural Tracer, *Bound. Layer Meteorol.*, *149*, 381-402. doi: 10.1007/s10546-013-9849-3, 2013.
- Zahorowski, W., A.D. Griffiths, S.D. Chambers, A.G. Williams, R.M. Law, J. Crawford and S. Werczynski: Constraining annual and seasonal radon-222 flux density from the Southern Ocean using radon-222 concentrations in the boundary layer at Cape Grim, *Tellus B*, *65*, 19622, doi:10.3402/tellusb.v65i0.19622, 2013.