

SUGÁRVÉDELEM

**Eötvös Loránd Fizikai Társulat
Sugárvédelmi Szakcsoportjának
On-line Folyóirata**
<http://www.sugarvedelem.hu/sugarvedelem/>

**VIII. Évfolyam 1. szám
2015**

BUDAPEST

HU ISSN 2060-2391

Kiadó: az Eötvös Loránd Fizikai Társulat Sugárvédelmi Szakcsoportja

Kiadásért felelős: Bujtás Tibor a Szakcsoport elnöke

Web megjelenés: Vincze Árpád

A szerkesztőbizottság elnöke:

Fehér István

A szerkesztőbizottság tagjai:

Csige István,

Déri Zsolt,

Elek Richárd,

Fehér Ákos,

Katona Tünde

Pesznyák Csilla,

Petrányi János,

Rónaky József,

Vincze Árpád

A szerkesztőség elérhetősége:

Levelezési cím: 1027 Budapest II. Fő u. 68.

e-mail: szerkesztoseg@sugarvedelem.hu

HU ISSN 2060-2391

A reaktorcsarnoki szellőztetés hatása súlyos atomerőműi balesetnél

Deme Sándor^{1*}, Pázmándi Tamás¹, C. Szabó István², Szántó Péter¹

¹MTA Energiatudományi Kutatóközpont, Budapest

²MVM Paksi Atomerőmű Zrt., Paks

*deme@aeki.kfki.hu

Effect of the reactor hall ventilation in the case of a severe NPP accident

The paper deals with the role of the reactor hall ventilation on the radiation situation in the reactor hall and in the environment in the case of a severe accident of the VVER-440/V-213 type NPP. In case of no voltage blackout there is an opportunity to ventilate the reactor hall using the ventilation system of the containment which has high, up to 99.9 percent of filtration efficiency for aerosols and iodine. The volume activity concentration of the air released via the ventilation stack will be about one thousand times lower than that for leakage without filtration.

Keywords: Accident, contamination, dose, NPP, reactor hall, ventilation.

Kivonat. *A közleményben ismertetjük, hogy egy VVER-440/V-213 típusú atomerőműben bekövetkező súlyos baleset esetén a reaktorcsarnok szellőztetése milyen hatással van a reaktorcsarnokban és a környezetben kialakuló sugárzási helyzetre. Amennyiben a baleset nem jár teljes feszültség kimaradással, akkor mód van a reaktorcsarnok szellőztetőrendszerének üzemeltetésére. A reaktorcsarnok normálüzemi szellőztetőrendszere nem tartalmaz szűrőket, ugyanakkor mód van arra, hogy a hermetikus tér átszellőztetéséhez használt szellőzőrendszert a reaktorcsarnok szellőztetésére alkalmazzák. E szellőzőrendszer 99,9%-os határfokú aeroszol és jódszűrővel rendelkezik, így üzeme révén a környezetbe kikerülő levegő aeroszol- és jód-aktivitáskoncentrációja ezerszer kisebb lesz, mint a szűrés nélkül kiszivárgó levegőé.*

Kulcsszavak. *Atomerőmű, baleset, dózis, reaktorcsarnok, szellőztetés, szennyeződés.*

A REAKTORCSARNOK SZELLŐZTETÉSE SÚLYOS BALESETNÉL

A VVER-440/V-213 típusú atomerőmű súlyos baleseténél a megolvadt reaktorzónából kilépő radionuklidok nagy aktivitáskoncentrációt hoznak létre a hermetikus térben. A jelentős hőmennyiség felszabadulása következtében a hermetikus térben túlnyomás alakul ki. A hermetikus térből szivárgás révén az ott lévő radioaktív anyag egy része a hermetikus tér környezetébe, ezen belül elsősorban a reaktorcsarnokba jut ki. A kikerülő aktivitás a hermetikus téri levegő aktivitáskoncentrációjának és a kikerülő levegő mennyiségének szorzata. A reaktorcsarnokba jutó szennyeződés működő szellőztetés esetén a szellőzőkéményen át a környezetbe kerül, szellőztetés hiányában egy része a reaktorcsarnok és a környezet közötti tömítetlenségeken keresztül a szabadba jut. A csarnokban maradó aeroszokok és elemi jód fokozatosan kiülepednek a csarnok falára, ennek és a bomlásnak következtében a légtérben aktivitásuk csökken. A nemesgázok esetében a szivárgáson felüli csökkenés csak a bomlás eredménye.

Normál üzennél a reaktorcsarnokból a szűrők nélküli TN13 szellőzőrendszerek továbbítják a levegőt a szellőzőkéményen át a környezetbe [1]. A TN13 rendszer mellett a csarnokban lévő levegő elszívására rendelkezésre áll két, általában a hermetikus tér átszellőztetésére szolgáló, aeroszol- és jódszűrővel ellátott TN01 szellőzőrendszer is. E rendszerek egyik lehetséges üzemzavari feladata a reaktorcsarnoki levegő szűrt elszívása, depresszió tartása. A depresszió biztosítása érdekében a befújt levegő mennyisége kevesebb kell legyen, mint az

elszívotté. Az így létrejövő depresszió biztosítja, hogy a radioaktív szennyeződés a reaktorcsarnokból a kapcsolódó helyiségek felé és a környezetbe ellenőrizetlenül ne juthasson ki.

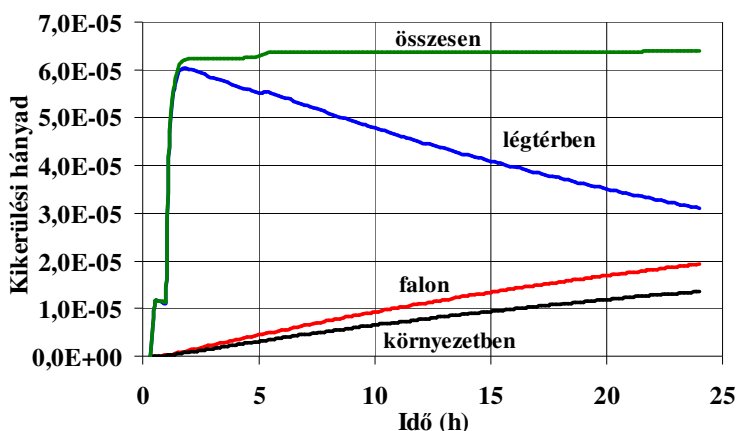
Megvizsgáltuk, hogy a TN01 rendszer alkalmazása révén milyen javulás érhető el a reaktorcsarnokban és a környezetben kialakuló sugárzási adatokban. Példaként egy adott súlyos baleseti szituációra vonatkozóan végeztük el a számításokat, de a számítás módszere más esetekre is alkalmazható abban az esetben, ha a reaktorcsarnok fala nem sérül és a szellőzőrendszerek üzemeltetéséhez szükséges tápfeszültség rendelkezésre áll.

SZÁMÍTÁSI PÉLDA EGY SÚLYOS BALESETRE

Kiindulási adatok szellőztetés nélkül

Számítási példánkban feltételezzük, hogy a nagy csőtörés következtében létrejövő baleset bekövetkezése utáni 20. percben a fűtőelemek részaktivitása a hermetikus térbe kerül, a 30. percben megkezdődik a zónaolvadás és a 90. percben sikerül helyreállítani a zóna hűtését [2, 3].

Kiindulási adatként ismertük a reaktorcsarnok légterében és falán lévő aktivitás mennyiségét és a környezetbe történő aktivitásvivárgást szellőzés nélkül (1. ábra). A feltételezések szerint a környezeti szivárgás 40 m magasán történik a reaktorcsarnok és a csarnok fala közötti tömítetlenségen át.



1. ábra. A hermetikus térből kikerülő aktivitás a reaktorcsarnok légterében és falán, valamint a környezetben és ezek összege a zónakészlet hányadában.

A szellőztetés hatása a reaktorcsarnok szennyezettségére és a környezeti kibocsátásra

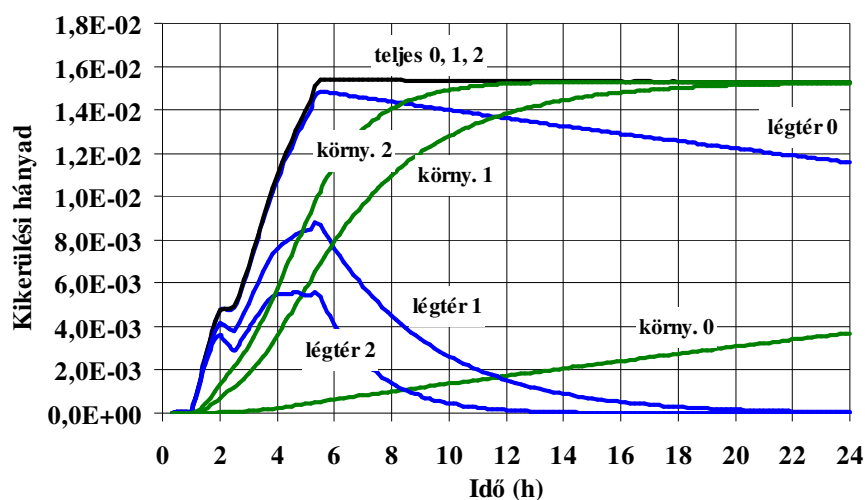
A szellőztetés hatásának számításakor feltételeztük, hogy

- a reaktorcsarnokba beáramló radioaktív anyagok a csarnok légterében mindig egyenletesen elkevert állapotban vannak,
- az elszívás 1 vagy 2 db, egyenként 40 000 m³/h szívóteljesítményű TN01 rendszerrel történik,
- a TN01 rendszer aeroszol- és jódszűrőinek hatásfoka egyaránt 99,9%,
- a reaktorcsarnok térfogata 160 000 m³ [1].

A felhasznált adatok [3] analízise révén megállapítottuk, hogy a csarnok légterében lévő aeroszokok falra történő átlagos kiülepedési sebessége $5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, az átlagos környezeti kiáramlási sebesség a csarnok légterében lévő aktivitás hányadában $3,6 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$.

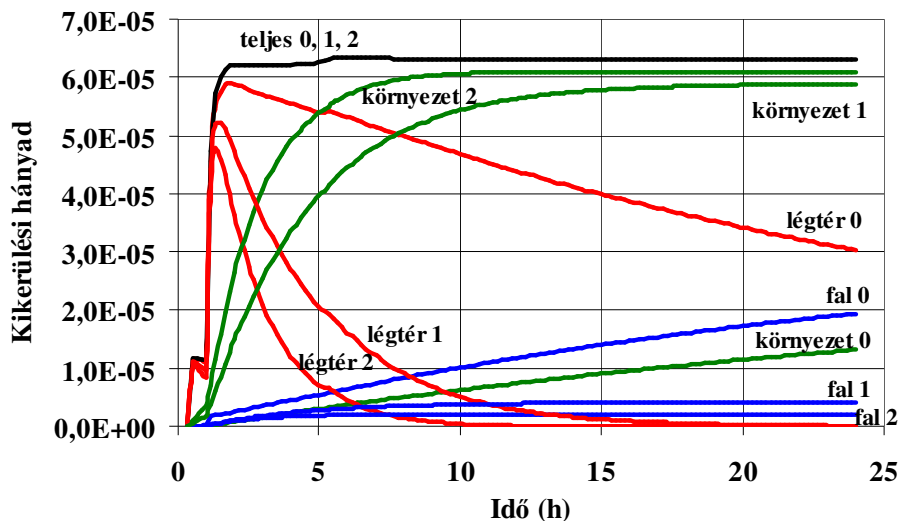
Az előzőekben meghatározott paramétereket felhasználva kiszámítottuk, hogy a csarnokból egy vagy két TN01 rendszerrel történő szűrt elszívás milyen hatással van a csarnok légtérében és a falán lévő aktivitásra, valamint a környezeti kikerülésre. A nemesgázok esetében nincs kiülepedés, ezért csak az elszívás hatása jelentkezik.

A nemesgázokra vonatkozó, kikerülési hányadban megadott légtér aktivitást a 2. ábra mutatja. Megállapítható, hogy elszívás esetén a légtérben lévő nemesgázok maximális mennyisége az elszívás nélküli esethez képest jelentősen csökken, 1 db TN01 üzeme esetén az eredeti érték 0,6, 2 db TN01 üzeme esetén pedig az eredeti érték 0,4-ed részére. A maximális érték elszívás nélkül csak lassan csökken, elszívással viszont gyors csökkenés érhető el. Ha egy TN01 rendszert alkalmazunk, akkor 21, kettő esetén pedig 12 óra múlva csökken a csarnok nemesgáz aktivitáskoncentrációja a szellőztetés nélküli érték 1%-ára. Meg kell jegyezni, hogy ezeket az adatokat – főként a maximum értékét – a hermetikus téri kiáramlás időfüggése szabja meg.



2. ábra. A nemesgázok kikerülési hányada a csarnok légtérében és a környezetben. A görbéknél szereplő számok (0, 1 és 2) az üzemelő TN01 szellőzőrendszerek számát jelölik.

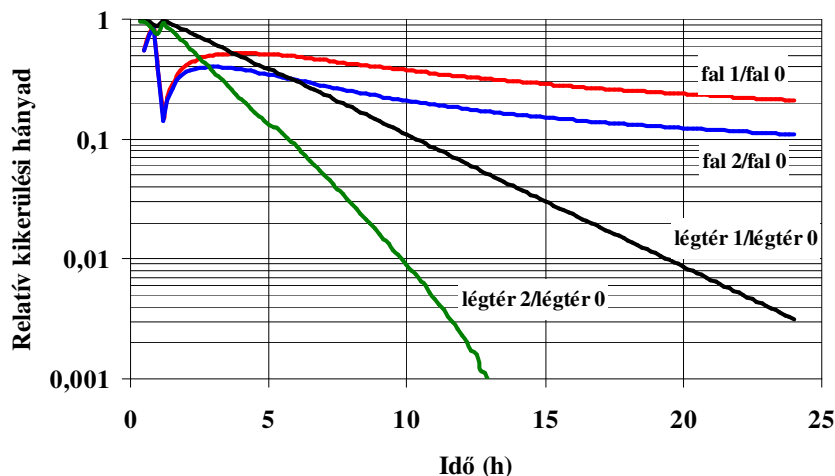
A továbbiakban példaként az aeroszol formájú jódra vonatkozó számszerű adatokat határoztuk meg. (A [3] csak aeroszol formájú jódot ad meg). Az aeroszolok, így az aeroszol formájú jódot is a csarnok falára történik a kiülepedés. A 3. ábra a falra kiülepedő jódot zónakészletben megadott kikerülési hányada mellett a légtérben maradó és a szűrőhatás figyelembe vétele nélkül a környezetbe kerülő, valamint a teljes jódmennyiséget is mutatja.



3. ábra. A reaktorcsarnok szellőztetésének hatása a légtérre, a falra és a környezetre vonatkozó jódk kikerülési hányadokra. Az adatoknál szereplő számok az üzemelő TN01 szellőzőrendszerek számát jelölik. A teljes mennyiség független a szellőztetéstől.

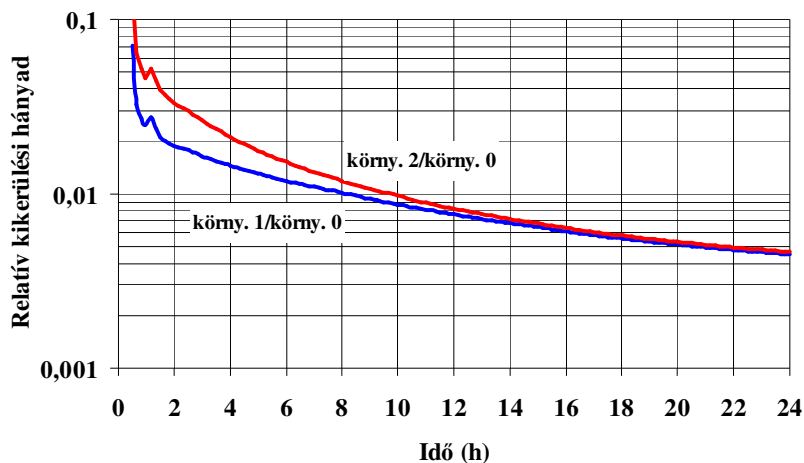
A falra kerülő jódmennyiség, azaz a kiülepedés két TN01 rendszer üzeme esetén csak a fele az egy rendszerre vonatkozó adatnak. A falra ülepedés sebessége (a görbe emelkedése) arányos a légtér aktivitáskoncentrációjával, ennek megfelelően szellőztetés nélkül a fal aktivitása (kikerülési hányada) kissé csökkenő meredekséggel folyamatosan nő, míg szellőztetés esetén a 7., illetve a 14. óra után a növekedés már nagyon kicsi.

A 4. ábra a légtér és a fal kikerülési hányadot a szellőztetés nélküli esetre normálva mutatja. A 10. órát alapul véve a falra a szellőzés nélküli állapothoz képest csak az eredeti mennyiség 40%-a (1 db TN01), illetve 20%-a (2 db TN01) kerül. A légtérnél ugyanezek az arányok 10%, illetve 1%.



4. ábra. Az aeroszol jódk falra és a légtérbe kerülés relatív értéke egy, illetve két darab TN01 szellőzőrendszer üzeme esetén a szellőztetés nélküli esethez képest. A jelölésekben lévő szám az üzemelő TN01 rendszerek számát jelenti.

A 3. ábra környezeti kikerülési adatait a szellőztetés nélküli esetre normálva és a szűrőhatás figyelembe vételével az 5. ábra mutatja. Szellőztetés esetén a környezeti kikerülés a TN01 rendszer szűrőhatásának következtében végeredményben az eredeti érték ezredrésztére csökken, de a csökkenés időfüggésében szerepet játszik az, hogy a szellőztetés légforgalma sokszorosa az elszívás nélküli szivárgásnak.



5. ábra. A jód környezeti kikerülési hányadának időfüggése az elszívás nélküli esethez viszonyítva 1, illetve 2 db TN01 rendszer üzeme esetén. A TN01 rendszerrel figyelembe vettük a 99,9%-os szűrési hatásfokot.

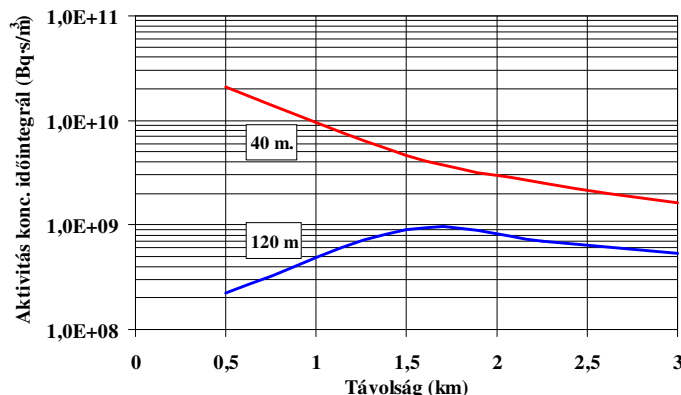
A szellőztetés révén a reaktorcsarnokban depresszió jön létre, ennek révén a reaktorcsarnokba kikerülő aktivitásnak csak sokkal kisebb része kerül az erőmű olyan helyiségeibe, amelyek közvetlen légtér kapcsolatban vannak a reaktorcsarnokkal, de amelyekbe a hermetikus térből közvetlenül nem kerül aktivitás. Így a szellőztetés nem csak a reaktorcsarnok, hanem az erőmű más helyiségeinek elszennyeződését is jelentősen csökkenti.

Hőtechnikai számítás

A szűrők hőterhelésének ellenőrzése céljából kiszámítottuk, hogy a TN01 rendszer szűrői a felhalmozódó radioaktív anyagok révén milyen mértékben melegednek fel. A melegedés meghatározására a levegő hőmérsékletemelkedését számítottuk ki. A konzervatív számításoknál feltételeztük, hogy a szűrőn marad az átáramló levegő teljes kiszűrhető aktivitása és a bomlás okozta aktivitáscsökkenést elhanyagoltuk. Az abszolút aktivitásokat a [4] alapján számítottuk ki. E feltételezésekkel a hőfejlődés mintegy 360 W [5], amely a 40 000 m³/h légforgalmat figyelembe véve a levegő hőmérsékletének 0,03°C-os emelkedését okozza.

A környezeti sugárzási helyzet idő és távolságfüggése

A környezeti sugárzási helyzetet a kibocsátás nuklidonkénti mennyisége mellett a meteorológiai körülmények és a kibocsátási magasság is befolyásolják [6]. Az aktivitáskoncentráció időintegrál távolságfüggését 40 és 120 m-es effektív kibocsátási magasságnál a 6. ábra mutatja. Látható, hogy a szellőzőkéményen át történő kibocsátásnál minden távolságon legalább 3-szor kisebb értéket kapunk, mint 40 m-es kibocsátási magasságnál.

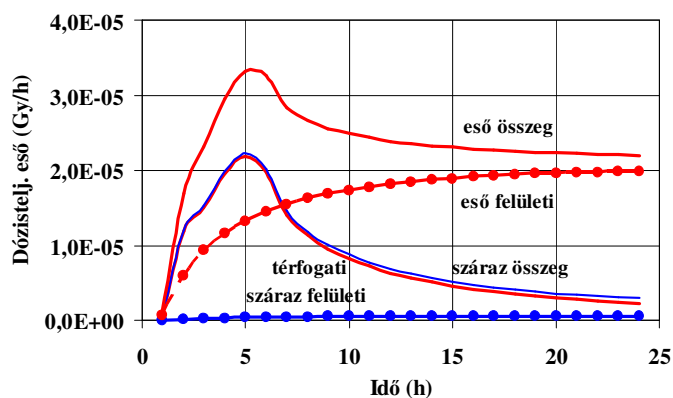


6. ábra. A talajfelszín közeli aktivitáskoncentráció időintegrál távolságfüggése 10^{15} Bq-es aeroszol forrástagnál, 40, illetve 120 m-es kibocsátási magasságnál, D Pasquill-kategóriánál és 10 m-en 5 m/s-os szélesebségnél száraz időben.

További módosító tényező a kibocsátás időtartama, mert hosszú időtartamú kibocsátásnál a szélirány statisztikusan várható ingadozását is figyelembe kell venni [7]. Ez a hatás 24 órás kibocsátásnál akár 4–5-szörös csökkenést is okozhat.

A környezeti dózisteljesítménynél a légtérben lévő radionuklidok, valamint a talaj felszínére kiülepedett radionuklidok gamma-sugárzását vizsgáljuk. A környezeti veszélyhelyzet megállapítása szempontjából ez utóbbinak van meghatározó szerepe, mert általános veszélyhelyzet a NAÜ ajánlás szerinti akkor jön létre, ha a talajszennyezettség gamma-sugárzásának dózisteljesítménye eléri az 1 mSv/h értéket [8]. A légtér- és a talajszennyezettség dózisének összege (külső dózis) a balesetnél a környezetben mérhető gamma-sugárzásnak felel meg.

A 7. ábra alapján látható, hogy a vizsgált esetben a szellőzőrendszer működése esetén a talajszennyezettség révén létrejövő dózisteljesítmény még a kedvezőtlen, esős időben is csak 0,02 mSv/h, ugyanakkor szellőzés nélkül ez az érték jelentősen meghaladhatja az 1 mSv/h értéket.



7. ábra. A környezeti dózisteljesítmény térfogati és felületi összetevői és azok összege (a szellőzőrendszer működése esetén) száraz időjárásnál és esőnél a kibocsátási ponttól 1,5 km-es távolságra D Pasquill-kategóriánál és 10 m-en 5 m/s-os szélesebségnél.

KÖVETKEZTETÉSEK

A reaktorcsarnok szellőztetésének figyelembevételére kidolgozott számítási módszerrel mintaszámítást végeztünk egy súlyos, zónaolvadással járó baleseti helyzetre. A számítások eredményeként megállapítottuk, hogy a szellőztetés révén

- a reaktorcsarnok légtér- és falaktivitása akár egy nagyságrenddel csökkenthető,
- a környezeti sugárterhelés mintegy két nagyságrenddel csökkenthető, és ennek révén még a vizsgált súlyos balesetnél sem jön létre általános környezeti veszélyhelyzet.

Meg kell jegyezni, hogy más forrástag esetében is az előzőekben ismertetett módszer alkalmazható a szűrt szellőztetés hatásának analízisére. A szellőztetés hatására várható aktivitáscsökkenés mind a reaktorcsarnok szennyezettsége, mind a környezeti kibocsátás szempontjából hasonló, mert a reaktorcsarnok légcseréje és a környezeti kibocsátásnál az aeroszol és jódszűrő minden esetben azonosak.

IRODALOM

- [1] Paksi Atomerőmű Végleges Biztonsági Jelentés 9.5.2.4 alfejezet. 2015. Verziószám: 10
- [2] Lajtha Gábor, Téchy Zsolt: Javaslat az SBKU csomag verifikációs programjának kidolgozásához. 202-100-00/2 NUBIKI 2011. július
- [3] A Nukleáris Biztonsági Kutatóintézet Kft. (NUBIKI) számítási adatai
- [4] Vértes Péter és Keresztúri András: Az üzemzavar-elemzések konzervatív zónaleltára, AEKI-RAL-2009-792-01/01
- [5] MicroShield 6.20. Gamma-sugárzás árnyékolást számító programcsomag. Grove Engineering. 2004
- [6] PC COSYMA An accident consequence assessment package for use on a PC. EUR 16239, 1996
- [7] R: H. Clarke: A Model for Short and Medium Range Dispersion of Radionuclides Released to the Atmosphere. report NRPB-R91, 1979
- [8] Criteria for Use in Preparedness and Response for a Nuclear or Radiological Emergency, GSG-2, Pub 1467, 2011

A közlemény a SOMOS alapítvány támogatásával készült

A paksi atomerőmű környezeti dózisadatainak analízise

Manga László*¹, Apáthy István², Deme Sándor², Hirn Attila², Lencsés Andás¹,
Pázmándi Tamás²

¹MVM Paksi Atomerőmű Zrt., Paks

²MTA Energetikai Kutatóközpont, Budapest
*mangal@npp.hu

Title - Analysis of the Environmental dose data in the vicinity of the Paks NPP.

Abstract - In the vicinity of the Paks NPP at the distance from 1 to 2 km 9 type A telemetric radiation monitoring stations are dislocated. At these points double gamma-radiation measurement is fulfilled, i.e. continuous dose rate telemetry (proportional counters manufactured by Bitt Company named as Bitt detectors) and exposure of thermoluminescent detectors (TLD). Similar measurements were performed at another point at the 25 km distance to obtain background values. Further 11 gamma telemetric points are at the same distance as type A points. For larger distances up to 30 km 14 C type TLD monitoring points were set as well. During 6 years (2009–2014) monthly gamma dose values were measured at the monitoring points listed above. Analyzing the measured data we have found $\pm 7\%$ standard deviation for the Bitt detectors, $\pm 9\%$ for TLDs at A type and $\pm 12\%$ at C type points. Normalizing the monthly data to annual mean at each points the standard deviations decreased to 2.1%, $\pm 5.2\%$ and $\pm 6.8\%$. In the next step these data were normalized to monthly mean values as the winter dose rates were lower than the summer ones. After double normalization the standard deviations decreased to $\pm 1.4\%$, $\pm 3.8\%$ and $\pm 5.4\%$.

Using double normalization of the raw monthly data minimum detectable dose became about 4 times lower for the Bitt detectors and 2 times lower for TLDs.

Keywords: Nuclear power plant, environmental dose, TLD, proportional counter.

Kivonat - A paksi atomerőmű 1–2 km-es környezetében a 9 db A típusú állomáson a környezeti gamma-sugárzás mérésére kettős rendszer van használatban. A dózisteljesítmény folyamatos távmérésére szolgálnak a Bitt gyártmányú proporcionális számlálók, az ún. Bitt szondák, a havi dózis mérésére pedig a PorTL rendszer termolumineszcens dózismérői, az ún. PorTL patronok. Ezen felül van még egy hasonló felszereltségű mérési pont Dunaföldváron. Az A típusú állomások távolságában van még további 11 db Bitt szonda, a 30 km-es sugarú körben pedig 14 mérőpont csak PorTL patronnal.

Hat év (2009–2014) havi gamma dózisainak analízisét végeztük el. Először meghatároztuk a nyers dózismérési adatok szórását. Megállapítottuk, hogy a szórás a Bitt szondáknál $\pm 7\%$, a PorTL patronoknál az A típusú állomásoknál $\pm 9\%$, a C típusúaknál $\pm 12\%$. Ha az adott állomás havi mérési adatait az adott állomás éves átlagára normáljuk, akkor az előzőekben felsorolt szórások lecsökkennek $\pm 2,1\%$, $\pm 5,2\%$ és $\pm 6,8\%$ -ra. A havi dózisadatok rendszeres évi menetet mutatnak, a téli adatok 2–4%-kal alacsonyabbak, a nyáriak ugyanennyivel magasabbak az éves átlagnál. Ha a már előzőekben normált adatokat a havi átlagértékekkel elosztjuk, akkor a szórások rendre $\pm 1,4\%$, $\pm 3,8\%$ és $\pm 5,4\%$.

Az ismertetett két lépéses normálással elérhető, hogy a PorTL patronokkal a normálás nélküli esethez viszonyítva közel kétszer, a Bitt szondákkal pedig négyszer kisebb havi dóziszváltozásokat is ki lehessen mutatni.

Kulcsszavak: atomerőmű, környezeti dózis, TLD, proporcionális számláló.

BEVEZETÉS

A paksi atomerőmű 1–2 km-es környezetében a 9 db A típusú állomáson a környezeti gamma-sugárzás mérésére kettős rendszer van használatban. A dózisteljesítmény folyamatos távmérésére szolgálnak a Bitt gyártmányú proporcionális számlálók, az ún. Bitt szondák, a havi dózis mérésére pedig a PorTL rendszer termolumineszcens dózismérői, az ún. PorTL patronok. Ezen felül van még egy hasonló felszereltségű mérési pont Dunaföldváron. Az A típusú állomások távolságában van még további 11 db Bitt szonda, a 30 km-es sugarú körben pedig 14 mérőpont csak PorTL patronnal.

A hat év (2009–2014) havi gamma dózisainak analízisét végeztük el olyan céllal, hogy az analízis révén meghatározzuk a nem természetes okokból eredő kimutatható gamma-sugárzás dózis emelkedést.

A KÖRNYEZETI GAMMA-SUGÁRZÁS DETEKTORAI

Az erőmű környezetében lévő környezeti gamma-sugárzás detektorait és a mérési pontokat az 1. táblázat adja meg.

Az A mérőpont az A típusú állomáson lévő PorTL patron és Bitt szondát jelenti, a B mérőpont hasonló, de távolabbi, az erőműtől független háttérrel mérő állomás, a C mérőpont a C típusú állomás PorTL patronja, a G mérőpont a csak Bitt szondával felszerelt G típusú állomások adatait tartalmazza, az L a paksi környezetellenőrző laboratórium udvarán elhelyezett PorTL patron.

1. táblázat. A mérőpontok és a kiértékelésben szereplő adatok száma, valamint a hat év alatt hiányzó adatok mennyisége

Detektor	Mérőpont						Adat	
	A	B	C	G	L	Összesen	Összes	Hiány db (%)
PorTL patron	9	1	14	-	1	25	1800	18 (1%)
Bitt szonda	9	1	-	11	-	21	1512	1 (0,07%)

A mérőpontokon elhelyezett PorTL patronok a PorTL rendszer detektorai.

A PorTL rendszer főbb paraméterei a következők:

- TL-anyag: $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ kristály.
- Mérési tartomány: 10 μSv – 100 mSv (környezeti dózisegyenérték).
- MKEH által hitelesített kiolvasó és patronok.
- Gamma-sugárzás energiatartomány: 48 keV – 1,25 MeV.
- A kiolvasó működési hőmérséklettartománya: -20°C -tól $+40^\circ\text{C}$ -ig.
- Tápellátás: beépített akkumulátor.
- Tömeg: patron ≤ 25 g, kiolvasó $\approx 2,6$ kg.

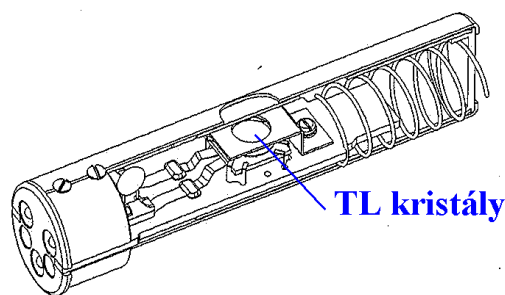
A PorTL rendszer fényképét az 1. ábra, a patron konstrukcióját a 2. ábra mutatja.

A MKEH által hitelesített, RS03/232-NLB típusú Bitt szonda (ld. 3. ábra) főbb adatai:

- Detektor típusa: proporcionális számláló.
- Mérési tartomány: 10 nSv/h – 10 Sv/h (környezeti dózisegyenérték).
- Gamma-sugárzás energiatartomány: 60 keV – 1,5 MeV.
- Működési hőmérséklettartomány: -30°C -tól $+70^\circ\text{C}$ -ig.
- Tápellátás: külső forrásból.
- Tömeg: $\approx 2,5$ kg.



1. ábra. A PorTL rendszer: bal oldalon a védőtokba helyezett patron, középen a kiolvasó, jobb oldalon a patron és a védőtok látható.



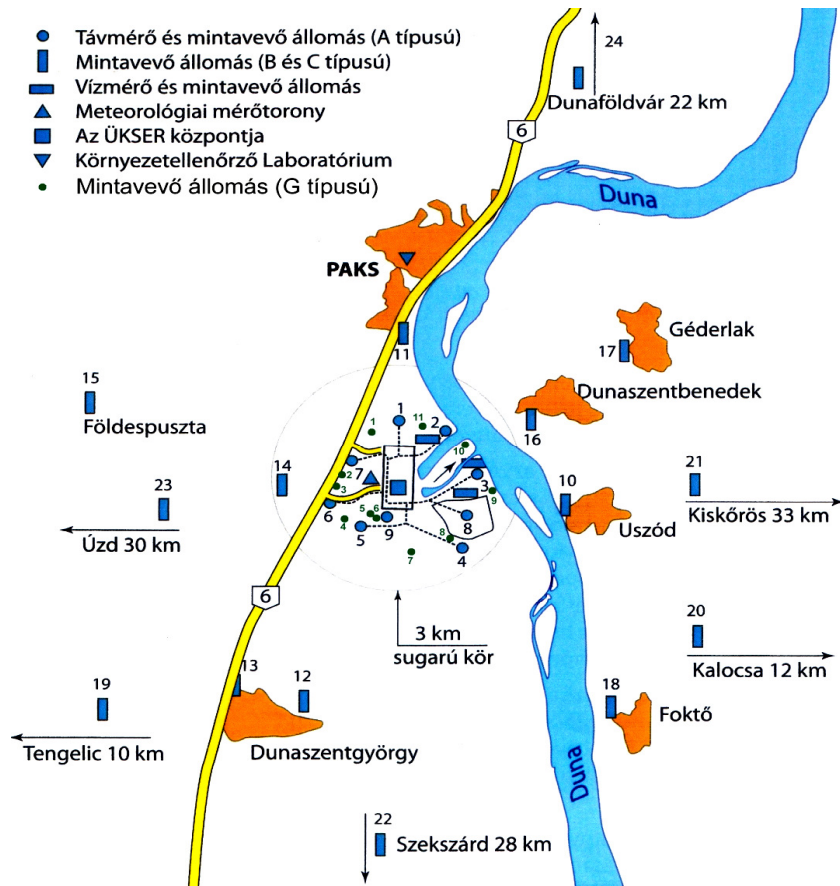
2. ábra. A PorTL rendszer patronjának konstrukciója. Bal oldalon a csatlakozó látható, a TL kristály alatt helyezkedik el a fűtőtest és az elektromos hőmérő.



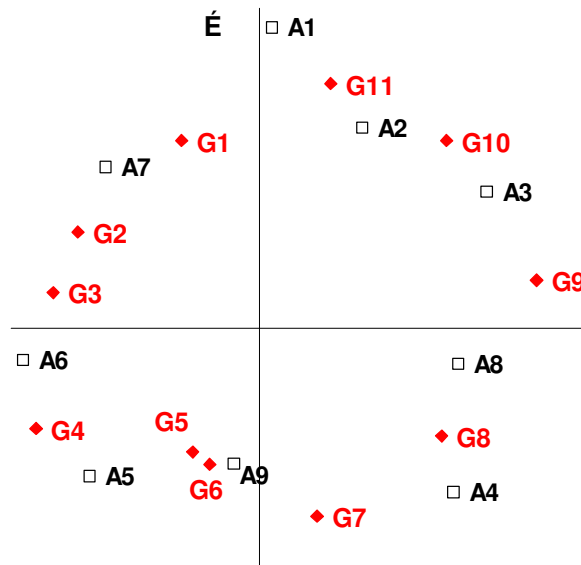
3. ábra. Az RS03/232-NLB típusú Bitt szonda fényképe. Középen a tokozott, alul és felül a tokozás nélküli

A KÖRNYEZETI GAMMA-SUGÁRZÁS MÉRŐPONTJAI

Az atomerőmű 30 km-es körzetében egy összetett mérőrendszer üzemel (4. ábra). A legközelebbi mérőpontok a 3 km-es körön belül elhelyezkedő A és G típusú állomások (5. ábra). Az A típusú állomásokon (6. ábra) PorTL patron és Bitt szonda is van (7. ábra). A B típusú állomás felszereltsége azonos az A típusúéval, de az erőműtől több mint 20 km-re van, hogy az esetleges, az erőműtől független háttérsugárzás emelkedést észlelni lehessen. A G típusú állomások csak a gamma-sugárzás folyamatos távmérésére szolgálnak, azokon csak Bitt szonda található (8. ábra), míg a C típusúakon (9. ábra) csak PorTL patron van. A C típusú állomásokon – ellentétben a többi mérőhellyel – a detektor alatt nem természetes talaj, hanem betonfelület van.



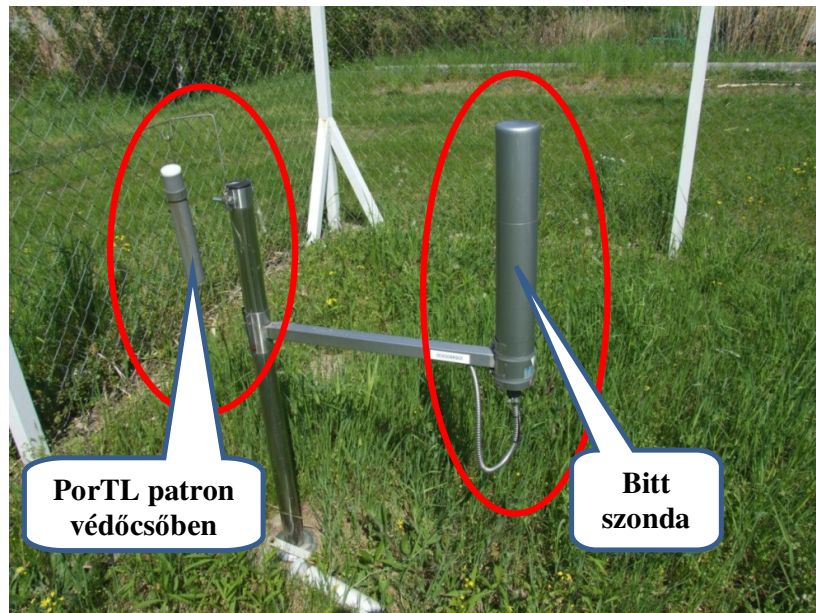
4. ábra. Az A, B, C, G és L mérőpontok (mérőállomások) elhelyezkedése. Az L mérőpont Pakson, a Környezetellenőrző Laboratórium kertjében elhelyezett PorTL patron.



5. ábra. Az A és G típusú állomások elhelyezkedése. Az erőmű a tengelyek metszéspontjában van, az állomások átlagos távolsága az erőműtől 1,5 km.



6. ábra. Az A típusú állomáson PorTL patron és Bitt szonda is van (a kép jobb szélén pirosan bekarikázva).



7. ábra. Az A típusú állomáson elhelyezett PorTL patron és Bitt szonda



8. ábra. A G típusú állomás, a piros karikában a Bitt szonda



9. ábra. A C típusú állomás, a piros karikában a PorTL patron védőcsőben

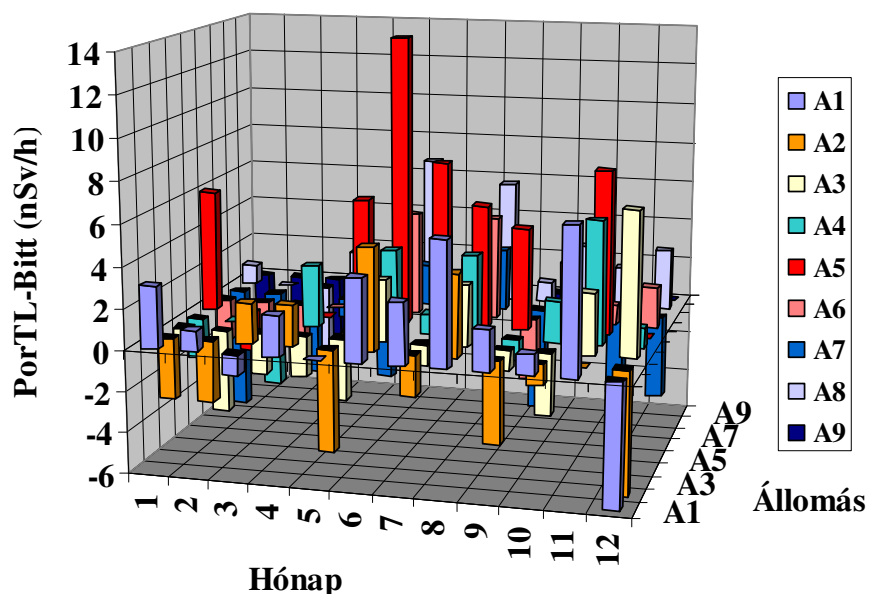
A MÉRÉSI EREDMÉNYEK ANALÍZISE

Elsőként összehasonlítottuk a kilenc A típusú állomáson a PorTL patronnal és a Bitt szondával mért átlagos havi dózisteljesítményeket. Meg kell jegyezni, hogy csak az A és B típusú mérőállomásokon van PorTL patron és Bitt szonda. A B állomás távol esik az erőműtől, ezért a kiértékelésbe ennek adatait nem vontuk be. Az összehasonlítás eredményeit a 2. táblázat adja meg. Látható, hogy az átlagos éves adatok nagyon jó egyezést mutatnak; az átlagos eltérés 2,0%.

2. táblázat. Az A1-A9 mérőállomásokon PorTL patronnal és Bitt szondával mért átlagos éves dózisteljesítmény 2009–2014. években

Adat	Dózisteljesítmény nSv/h értékben							
	2009	2010	2011	2012	2013	2014	Átlag	Szórás
PorTL patron	77,6	72,7	74,2	75,3	73,9	72,1	74,3	±1,80
Bitt szonda	76,9	74,7	76,5	76,5	76,1	75,4	76,0	±0,75
PorTL patron-Bitt szonda	0,7	-2,0	-2,3	-1,2	-2,2	-3,3	-1,7	±1,25

Megvizsgáltuk azt is, hogy az egyes hónapokra és állomásokra vonatkozóan hogyan alakulnak a PorTL patronnal és a Bitt szondával mért dózisteljesítmények közötti eltérések. A legnagyobb eltérést az A5 állomás mutatta (10. ábra). A havi adatok mérése után célszerű az ilyen összehasonlítást elvégezni, hogy nagy eltérésnél az esetleges kiváltó okot mielőbb meg lehessen határozni.



10. ábra. Az A1–A9-es állomásokon PorTL patronnal és Bitt szondával mért dózisteljesítmények közötti eltérések a 2009. évben

A továbbiakban vizsgáljuk meg egy-egy évre vonatkozóan az adott állomástípuson adott módszerrel (PorTL patron vagy Bitt szonda) meghatározott, hónaponkénti mérési adatokat. Az egyes mérési pontokon az óránkénti dózisteljesítményre normált havi átlagos természetes dózisteljesítmények nem azonosak (3. táblázat). Ennek oka az, hogy az állomások környezetében lévő talaj radioaktív koncentrációja eltérő, de e mellett a dózisteljesítményt befolyásolja a talaj aktuális nedvességtartalma és az esetleges hótakaró is. Ha ezeket a módosító tényezőket a lehetőség szerint korrigáljuk, akkor a mérési adatok eltérései lényegesen csökkenthetők és ennek révén a nem környezeti tényezőkből létrejövő dózisteljesítmény emelkedés kimutatási határa javulhat.

3. táblázat. Az A típusú állomásokon PorTL patronokkal 2009-ben mért havi átlagos dózisteljesítmény adatok nSv/h egységben

Állomás	Hónap												Átlag
	jan.	febr.	márc.	ápr.	máj.	jún.	júl.	aug.	szept.	okt.	nov.	dec.	
A1	75	73	70	74	72	76	75	78	74	73	82	66	74,0
A2	70	70	74	75	68	78	71	77	70	73	76	68	72,5
A3	80	77	78	80	79	85	81	86	82	80	82	79	80,8
A4	77	79	75	84	79	84	81	84	80	82	87	79	80,9
A5	81	72	75	78	85	92	87	85	85	78	86	75	81,6
A6	75	73	74	78	76	82	79	82	75	80	81	79	77,8
A7	66	69	67	71	67	74	70	74	67	70	70	69	69,5
A8	85	84	80	89	88	94	89	93	89	89	88	86	87,8
A9	72	71	70	72	72	77	72	76	72	73	76	74	73,1
átlag	75,7	74,2	73,7	77,9	76,2	82,4	78,3	81,7	77,1	77,6	80,9	75,0	77,6
szórás	5,87	4,87	4,09	5,82	7,24	7,04	6,87	6,02	7,32	5,94	5,95	6,48	6,50

Az éves átlag adatokat értékelve megállapítottuk, hogy a minimális dózisteljesítmény érték 69,5 nSv/h, a maximális érték 87,8 μ Sv/h, az átlagos érték 77,6 nSv/h. A teljes adatmennyiség (9 állomás x 12 hónap=108 adat) szórása $\pm 6,5 \mu$ Sv/h, azaz $\pm 8,4\%$.

Kiküszöbölendő az állomások környezetében lévő eltérő talajaktivitásból eredő átlagos dózisteljesítményt eltérést, normáljuk az adott állomás havi adatait az adott állomás éves átlagára, ezzel kiküszöbölve az állomások helyén lévő átlagos éves dózisteljesítmény eltérést. Az így normált adatokat a 4. táblázat tartalmazza

4. táblázat. Az állomások éves átlagára normált relatív dózisteljesítmények

állomás	hónap											
	jan.	febr.	márc.	ápr.	máj.	jún.	júl.	aug.	szept.	okt.	nov.	dec.
A1	1,014	0,986	0,946	1,000	0,973	1,027	1,014	1,054	1,000	0,986	1,108	0,892
A2	0,966	0,966	1,021	1,034	0,938	1,076	0,979	1,062	0,966	1,007	1,048	0,938
A3	0,991	0,954	0,966	0,991	0,978	1,053	1,003	1,065	1,015	0,991	1,015	0,978
A4	0,952	0,976	0,927	1,038	0,976	1,038	1,001	1,038	0,989	1,013	1,075	0,976
A5	0,993	0,883	0,919	0,956	1,042	1,128	1,066	1,042	1,042	0,956	1,054	0,919
A6	0,964	0,938	0,951	1,002	0,976	1,054	1,015	1,054	0,964	1,028	1,041	1,015
A7	0,950	0,993	0,964	1,022	0,964	1,065	1,007	1,065	0,964	1,007	1,007	0,993
A8	0,968	0,956	0,911	1,013	1,002	1,070	1,013	1,059	1,013	1,013	1,002	0,979
A9	0,985	0,971	0,958	0,985	0,985	1,054	0,985	1,040	0,985	0,999	1,040	1,013
átlag	0,976	0,958	0,951	1,005	0,982	1,063	1,009	1,053	0,993	1,000	1,043	0,967
szórás	0,021	0,033	0,033	0,026	0,028	0,029	0,025	0,011	0,027	0,021	0,034	0,042

A teljes adatmennyiség szórása a normálás nélküli 8,4%-ról lecsökkent 4,3%-ra. A következőkben az évszakos változások kiküszöbölésére az állomások értékeit normáljuk az adott hónap 9 állomásra vett átlagos értékével. Az így kapott eredményeket a 5. táblázat mutatja.

5. táblázat. Az állomások éves átlagára és a havi átlagos értékre normált relatív dózisteljesítmények

Állomás	Hónap												átlag
	jan.	febr.	márc.	ápr.	máj.	jún.	júl.	aug.	szept.	okt.	nov.	dec.	
A1	1,039	1,030	0,994	0,995	0,991	0,967	1,004	1,001	1,007	0,986	1,062	0,922	1,000
A2	0,990	1,008	1,073	1,030	0,955	1,012	0,970	1,008	0,972	1,007	1,005	0,970	1,000
A3	1,015	0,995	1,015	0,986	0,997	0,991	0,994	1,011	1,023	0,991	0,973	1,012	1,000
A4	0,975	1,019	0,974	1,033	0,995	0,977	0,992	0,986	0,996	1,013	1,030	1,010	1,000
A5	1,018	0,921	0,966	0,952	1,061	1,061	1,057	0,989	1,049	0,956	1,010	0,951	0,999
A6	0,988	0,979	0,999	0,998	0,995	0,991	1,006	1,000	0,970	1,028	0,997	1,050	1,000
A7	0,973	1,036	1,013	1,017	0,982	1,002	0,998	1,011	0,971	1,007	0,965	1,027	1,000
A8	0,992	0,998	0,957	1,009	1,021	1,007	1,004	1,005	1,020	1,013	0,960	1,013	1,000
A9	1,010	1,014	1,007	0,981	1,004	0,992	0,976	0,987	0,992	0,999	0,997	1,047	1,000
átlag	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000	1,000
szórás	0,022	0,034	0,034	0,026	0,029	0,027	0,025	0,010	0,027	0,021	0,032	0,044	0,028

A teljes adatmennyiség szórása a normálás nélküli 8,4%-ról és az állomás átlagára történő normálás utáni 4,3%-ról végeredményben lecsökkent 2,8%-ra, azaz az eredeti érték egyharmadára, ezzel a mesterséges eredetű dózisteljesítmény emelkedés kimutatási határa (3σ) ~8%, ami a 77 nSv/h átlagos dózisteljesítménynek megfelelő 56 μ Sv átlagos havi dózis esetében mintegy 4,5 μ Sv dóziselmelkedésnek felel meg.

A leírtaknak megfelelően az adatfeldolgozás lépései a következő.

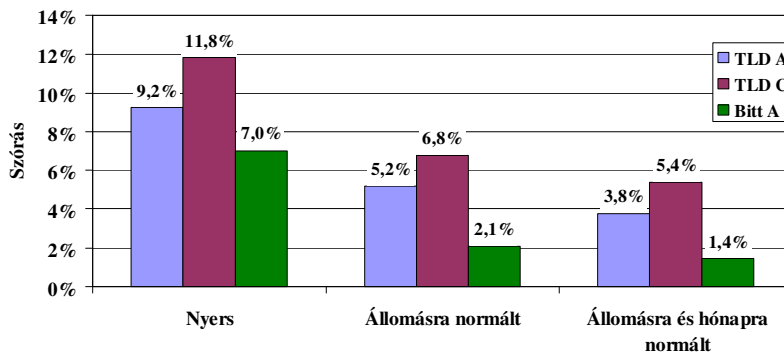
- Az adott típusú detektorok mérési adatainak szórását meghatározzuk (szórás 1)
- Az adott típusú detektorok mérési adatait az adott pont éves átlagára normálva kiküszöböljük a mérési pont átlagos háttere közötti különbséget (szórás 2)
- Az előzőekben normált adatokat az adott hónap átlagos intenzitására normáljuk (szórás 3).

A leírtaknak megfelelően az adatfeldolgozást elvégeztük a teljes rendelkezésre álló hatéves adatbázisra. A hat évre vonatkozó nyers, az állomás éves átlagára és a havi átlagra is normált mérési adatok szórása (11. ábra):

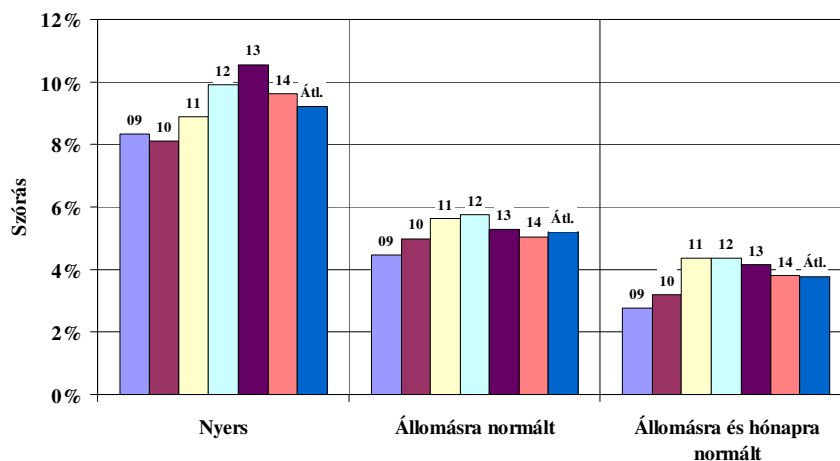
- PorTL patron az A típusú állomásokon 3,8%
- PorTL patron a C típusú állomásokon 5,4%
- Bitt szonda az A típusú állomásokon 1,4%.

Megállapítható, hogy az A típusú állomásokon, azaz mintegy 1,5 km-es sugarú körön belül elhelyezett PorTL patronok adatainak korrigált szórása szignifikánsan kisebb, mint a nagy területen szétszórta C típusú állomásokra vonatkozó adat. A Bitt szondák mérési eredményei nagyon kis szórást mutatnak, ami nagyrészt annak köszönhető, hogy ezeknek a méréseknek statisztikus pontossága rendkívül jó.

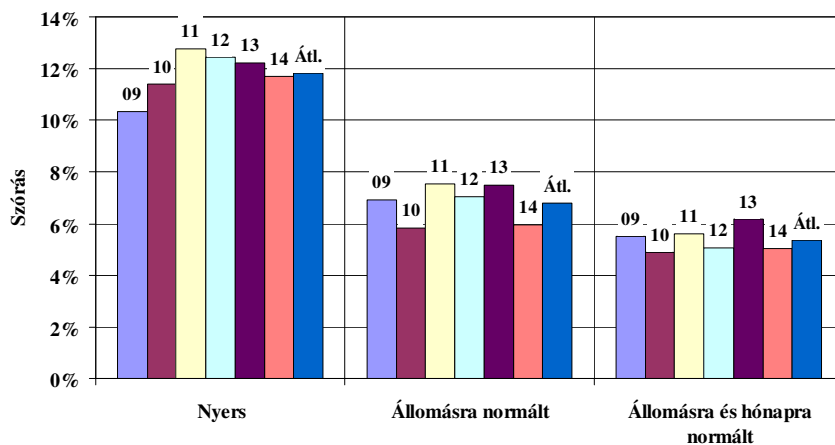
Megvizsgáltuk azt is, hogy a mérési adatok korrigált szórása mennyire állandó a vizsgált 6 évre vonatkozóan. Megállapítható, hogy az A típusú állomásokon elhelyezett PorTL patronok adatainak szórása egyik évben sem haladta meg a 4,5%-ot (12. ábra), ami azt jelenti, hogy a 3σ értéknek megfelelő kimutatási határ 7 μ Sv az egyhavi dózisznál. A C típusú állomásokra vonatkozó hasonló érték 4,5% helyett mintegy 6% (13. ábra). Ugyanez az érték Bitt szondák esetében ennek az értéknek mintegy egyharmada, azaz mintegy 2 % (14. ábra).



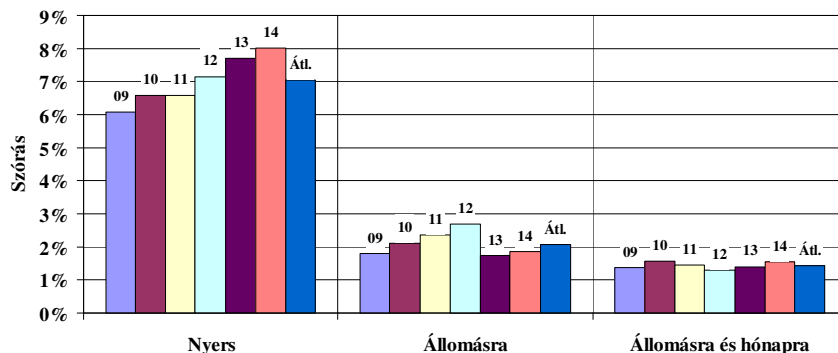
11. ábra. A hat évre vonatkozó nyers, az állomás éves átlagára és a havi átlagra is normált mérési adatok szórása (TLD – A és C típusú állomások, Bitt szonda A típusú állomások)



12. ábra. A típusú állomásokon mért PorTL mérési adatok szórása. Az oszlopok fölött lévő számok az évszám két utolsó számjegyei

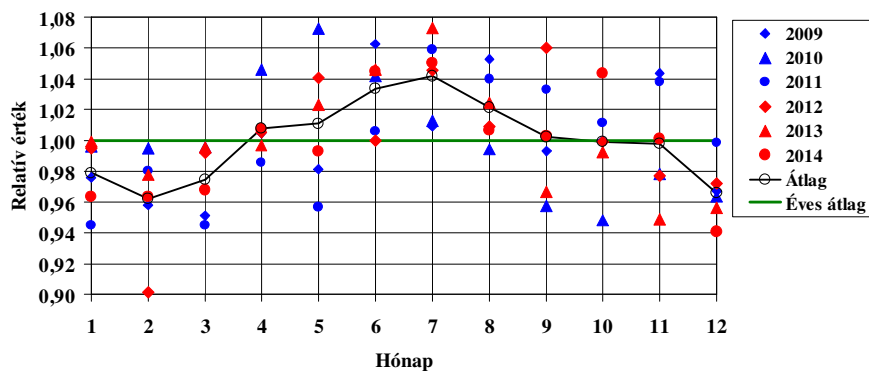


13. ábra. A C típusú PorTL adatok szórása. Az oszlopok feletti számok az évszám két utolsó számjegyei

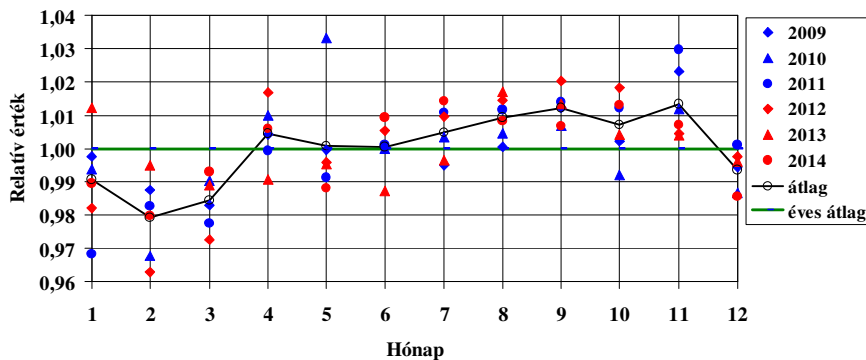


14. ábra. A Bitt szondák mérési adatainak szórása. Az oszlopok feletti számok az évszám két utolsó számjegyei

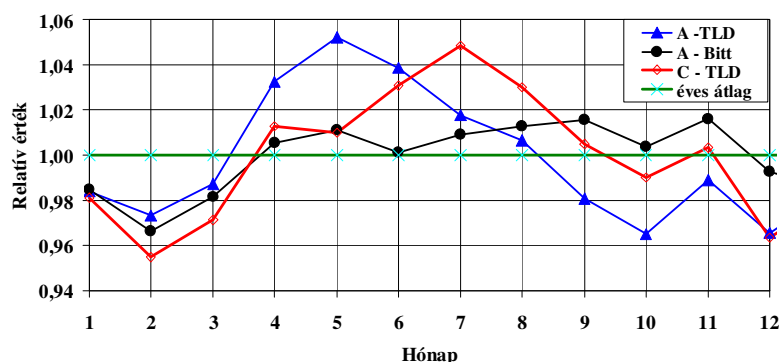
A 15. ábra az A típusú állomásokon a PorTL detektorokkal 6 éven át mért relatív (az éves átlagra normált) havi dózisteljesítményeket mutatja. Bár az eredmények jelentős szórást mutatnak, de a mérési eredmények átlagában egyértelműen kirajzolódik a hidegebb évszakok nagyobb talajnedvesség tartamának megfelelő kisebb dózisteljesítmény a melegebb, szárazabb hónapok adataihoz képest. Ugyanakkor viszont a Bitt szondák adatainál ez az évszakos változás sokkal kisebb (16. ábra). A 17. ábra együtt mutatja az A és C típusú állomásokon elhelyezett PorTL patronok és az A típusú állomásokon lévő Bitt szondák jelzésének havi menete hat évre átlagolva. Figyelemre méltó, hogy a PorTL patronok esetében a C típusú állomásokon a nyári csúcs két hónappal később jelentkezik, mint az A típusú állomásoknál, míg a Bitt szondáknál nem észlelhető nyári csúcs. Meg kell jegyezni, hogy az A típusú állomásoknál mind a PorTL patron, mind a Bitt szonda alatt természetes talaj van, a C típusú állomásoknál pedig betonfelület, de ezzel a leírt eltérések nem magyarázhatóak.



15. Az A típusú állomásokon elhelyezett PorTL patronok jelzésének hat évre vonatkozó havi eloszlása

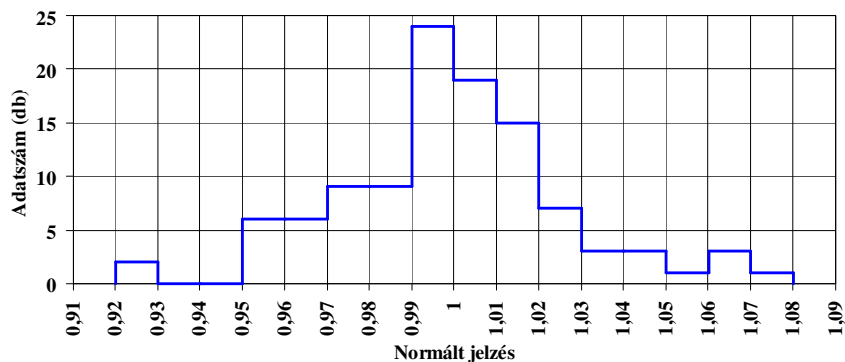


16. ábra. A Bitt szondák jelzésének hat évre vonatkozó havi eloszlása



17. ábra. Az A és C típusú állomásokon elhelyezett PorTL patronok és az A típusú állomásokon lévő Bitt szondák jelzésének havi menete hat évre átlagolva

Végül megvizsgáltuk a kilenc A típusú állomás kétszeresen normált kétévi PorTL adatának jelzés gyakoriság szerinti eloszlását, amelyik közelítő Gauss eloszlást mutat (18. ábra), a szórás nagysága 2,7%. ez megfelel az előzőekben számított értékekkel (5. táblázat).



18. ábra. 216 kétszeresen normált PorTL patron mérési adat gyakoriság eloszlása

KÖVETKEZTETÉSEK

Az elvégzett analízisek alapján megállapítható, hogy az állomások éves átlagos értékére és a havi átlagos értékekre történő normálás révén a kimutatható legkisebb dózis értéke jelentősen lecsökken (6. táblázat), azaz a PorTL patronokkal a normálás nélküli esethez viszonyítva közel kétszer, a Bitt szondákkal pedig akár négyszer kisebb dózisokat is ki lehet mutatni, ezért a havi adatok kiértékelésénél a leírt módszert kívánjuk használni.

6. táblázat. A havi adatok alapján kimutatható dózisok (3σ)

Adatok	$\mu\text{Sv/hónap}$		
	TLD A	TLD C	Bitt A
Nyers	14,8	18,9	11,5
Állomásra normált	8,3	10,9	3,4
Hónapra is normált	6,0	8,6	2,4

Vízben oldott radon meghatározása folyadékszintillációs (LSC) technikával

Osváth Szabolcs*, Homoki Zsolt
Országos Közegészségügyi Központ
Országos Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Igazgatóság
Lakossági és Környezeti Sugáregészségügyi Osztály
1221 Budapest, Anna utca 5.
*osvath.szabolcs@osski.hu

Determination of radon in water using liquid scintillation spectrometry (LSC)

Abstract – Monitoring of radon in drinking water will be necessary after implementation of the 2013/51/EURATOM directive in the near future. An old standard, based on liquid-liquid extraction and LSC measurement has been tested. As most challenging part of the procedure is degassing of radon, practical solution were checked to overcome this problem in the field. The method was tested by analyzing water samples with known activity concentration of ^{222}Rn .

Keywords: radon in water, liquid-liquid extraction, liquid scintillation spectrometry (LSC)

Kivonat – Az Európa Tanács 2013/51/Euratom irányelvének a közeli jövőben várható hazai bevezetésére való felkészülés jegyében megvizsgáltunk egy régi szabványt, amelyben a vízben oldott radon meghatározása folyadék-folyadék extrakciót követő LSC méréssel történik. A legnagyobb kihívást a radon kigázosodásának a megakadályozása jelenti, ezért gyakorlati megoldásokat teszteltünk avval kapcsolatban, hogyan lehet ennek a kihívásnak terepi viszonyok között is megfelelni. A módszert ismert ^{222}Rn -aktivitáskoncentrációjú vízmintákon teszteltük.

Kulcsszavak: vízben oldott radon, folyadék-folyadék extrakció, folyadékszintillációs spektrometria (LSC)

BEVEZETÉS

Az Európa Tanács 2013/51/EURATOM irányelvét [1] még idén át kell ültetni a tagállamok jogrendjébe (Magyarországon e cikk írásakor a tárcaközi egyeztetés zajlik). Az irányelv értelmében az ivóvizekben – további radioaktív komponensek mellett – a radon aktivitáskoncentrációját is ellenőrizni kell.

Az irányelvből nem derül ki, hogy „radon” alatt a 86-os rendszámú *elemet*, vagy annak a 222-es tömegszámú *izotópját* kell érteni; azonban más uniós irányelvek [2] és nemzetközi ajánlások [3] szóhasználatát és a többi radonizotóp rövid felezési idejét alapul véve feltehető, hogy az utóbbiról van szó. (Ez a bonyodalom, miszerint egy elemet és annak egy izotópját ugyanazon névvel azonosítják, lényegében egyedülálló a periódusos rendszerben. Csak a hidrogén esetében hasonló a helyzet, bár ott korántsem ennyire rossz, ugyanis az ^1H nuklidot nem csak hidrogénnek, hanem próciumnak is nevezhetjük.) A ^{222}Rn és rövid felezési idejű bomlástermékeinek fontosabb nukleáris adatait foglalja össze az 1. táblázat. Vízminták esetében a bomlási sornak a ^{214}Po -ot követő tagja (a ^{210}Pb) 22,3 éves felezési idejének köszönhetően nincsen bomlási egyensúlyban az anyanuklidjával, így a radon témakörétől külön tárgyalandó.

1. táblázat. A ^{222}Rn és rövid felezési idejű bomlástermékeinek fontosabb nukleáris adatai [4] alapján. (A β -sugárzó nuklidoknál „A sugárzás energiája” oszlopban a maximális β -energia és a hozam szerepel.)

Nuklid	Felezési idő	Bomlástípus	A sugárzás energiája
^{222}Rn	3,82 nap	α	5590 keV
^{218}Po	3,10 perc	α	6002 keV
^{214}Pb	26,8 perc	β^-	672 keV (48,9%) 729 keV (42,2%)
^{214}Bi	19,9 perc	β^-	3272 keV (18,2%) 1542 keV (17,8%) 1508 keV (17,0%)
^{214}Po	164,3 μs	α	7687 keV

A vízben oldott radon aktivitáskoncentrációjának meghatározására többféle technika is kínálkozik. Az egyik lehetőség az, hogy zárt rendszerben valamilyen gáz (pl. levegő) átbuorítással kihajtják a vízmintából a benne oldott radont, és a gáz radonaktivitását határozzák meg a radon vagy valamelyik bomlásterméke sugárzásának detektálásával. Ebből a vízminta és a teljes rendszer térfogatának ismeretében kiszámolható a vízben oldott radon aktivitáskoncentrációja. Intézetünk rendelkezik akkreditációval (NAT-1-0969/2014) ezen az eljárás alapján radon-meghatározásra [5]. A mérést Durrige RAD7 típusú mérőműszerrel végezzük a radon leányelemek aktivitásának ionimplantált Si félvezető detektoros mérésével. A módszer kimutatási határa 1,9 Bq/l.

Egy másik módszer szerint kb. 10 ml vízmintát egyszerűen elegyíteni kell kb. 10 ml (vízzel elegyedő) LSC koktéllal, ezt követően az elegy LSC készülékben megmérhető. A módszer kimutatási határa a jelenlegi legjobb LSC készülék, a Quantulus használata esetén 0,2 Bq/l [6].

Egy harmadik esetben az LSC mérés technikához vízzel nem elegyedő koktélt használnak. A radon szerves oldószerekben jobban oldódik, mint vízben; vagyis folyadék-folyadék extrakcióval a radont koncentrálni lehet, így a kimutatási határ csökkenthető. Az eljárás egyik változata olvasható az MSZ 19383:1988 szabványban [7], aminek alapján a Hydrosys Labor végzi akkreditált méréseit (NAT-1-1714/2012) 1 Bq/l-es kimutatási határral [8].

Munkánk célja az említett szabvány elméleti hátterének megértése, az abban szereplő eljárás gyakorlati szempontú vizsgálata (eszközök kiválasztása, mintavétel, mintaszállítás, extrakció kivitelezése) és esetleges továbbfejlesztése volt (különös tekintettel a szabvány bevezetése óta eltelt negyed század műszaki fejlődésére, pl. az azóta megjelent koktélokra); részben a vonatkozó szakirodalom tanulmányozása, részben saját kísérletek segítségével.

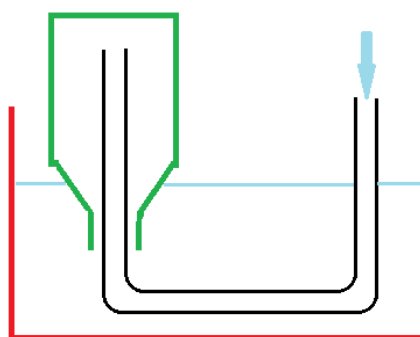
MÓDSZER, ANYAGOK, ESZKÖZÖK

Vizsgálatainkat zömmel a Rudas Ivócsarnokban vételezhető Juventus, Attila és Hungária gyógyvizekkel végeztük, ugyanis ezek könnyen elérhetőek, és Resch Anita [9] szerint viszonylag állandó a radontartalmuk. A vízmintát műanyag flakonba vettük, majd hozzáadtunk 20 ml-t a szabvány [7] szerinti koktélból. Ezt a koktélt úgy készítettük, hogy 1 l analitikai tisztaságú toluolban feloldottunk 4 g 2,5-difenil-oxazol (a folyadékszintillációs irodalomban gyakran használt nevének PPO-t) és 0,1 g 1,4-bisz-(5-feniloxazol-2-il)-benzol (alias POPOP-ot). A radont néhány perces intenzív rázással extraháltuk, majd a fázisok szétválása után a koktélt LSC küvetkába juttattuk. A mérést Perkin Elmer gyártmányú Tri-Carb 2900TR típusú LSC készülékkel végeztük α/β -diszkriminációs üzemmódban. A jelalak-diszkrimináció értékét 125 ns-ra állítottuk be, és tipikusan 100 perces méréseket végeztünk.

AZ ELJÁRÁS VIZSGÁLATA (DISZKUSSZIÓ)

A radon szökése (kigázosodás)

Az egész eljárás legproblematicusabb jellegzetessége a radon kigázosodása, vagyis hogy a radon szabad levegővel érintkezve nagyon könnyen távozik a folyadékfázisokból. (Ezt kísérletileg is teszteltük: nyitott LSC-küvetéből 25 perc alatt a radon negyede elillant.) Ennek már a mintavétel során jelentősége van, nem könnyű ugyanis a mintázandó vizet úgy palackba zárni, hogy az előtte ne kerüljön érintkezésbe a levegővel. A kérdésre Csige Istvánék azt a megoldást találták [10, 11], hogy a mintavevő edényt egy vízzel teli vödörbe állították fejjel lefelé, és egy gumicső segítségével perceként keresztül öblítették a mintavevő edény térfogata többszörösének megfelelő mennyiségű friss mintázandó vízzel. A mintavételt követően a mintavételi edény száját még a víz színe alatt ledugaszolták. (A mintavételi elrendezést az 1. ábra mutatja.)



1. ábra. A Csige Istvánék-féle mintavétel. A mintavevő edényt zöld, a vödört (vagy lavórt) piros, a gumicsövet fekete, a vízszintet világoskék színnel jelöltük. A mintázandó víz a gumicsövön keresztül öblíti a (vízzel teli) mintavevő edényt, és annak szájánál áramlik ki a vödörbe (a vödörben lévő víz szintje alatt)

A mintát annak vétele és laboratóriumba szállítása között huzamosabb ideig (hetekig) tárolni a ^{222}Rn felezési idejére való tekintettel értelmetlen; de hazánk méretét és úthálózatának fejlettségét figyelembe véve szükségtelen is. Más a helyzet pl. Ausztráliában, ahol 17 napos komoly vizsgálatot folytattak avval kapcsolatban, hogy különböző palacktípusokból (közönséges ásványvizes PET palack, nagy sűrűségű polietilénből készült savpalack, egyszerű laboratóriumi spriccflaska) milyen gyorsan szökik meg a radon. A mi szempontunkból releváns eredmény, hogy 1 óra alatt 3-5%, 1 nap alatt 5-10% a veszteség [6].

Megjegyzendő, hogy a radonnak a mintaszállítás alatti szökése bármely mérési technika alkalmazása esetében probléma, ezért számos gyakorlati tanács született már evvel kapcsolatban: pl. a mintavételhez jól záródó üvegedényt érdemes választani; a mintavevő edényt csurig kell tölteni; célszerű minél nagyobb mennyiségű, de legalább 1 l mintát venni; ha lehetőség van rá, akkor a minta hűtendő stb. Ehhez annyit tehetünk hozzá, hogy hasznos lehet a szerves fázist minél előbb (akár közvetlenül a mintavétel után) ráönteni a mintára, noha eddigi eredményeink nem támasztják alá ennek a szükségességét.

A szabvány szerint a mintát „óvatosan, buborékképződés mentesen” kell a választótölcsérbe tölteni [7]. Ezt azonban – minden igyekezetünk ellenére – egyszer sem sikerült megfelelően elvégeznünk: a radon vesztesége 50% fölött volt minden olyan esetben, amikor a mintát (akár a szerves fázissal együtt, akár külön) a mintavevő edényből rázótölcsérbe töltöttük át. Mivel a mintát közvetlenül rázótölcsérbe venni meglehetősen

bizarr, a mindennapi gyakorlat szempontjából nehézkes eljárás (ami terepi viszonyok között az üvegeszköz-állomány komoly amortizációjához vezetne), a használatáról le kellett mondanunk, noha tagadhatatlan, hogy a fázisok szétválasztása rázóitölcsérben a legkényelmesebb. (Az extrakció kivitelezésének leírása a későbbi, „Az extrakció a gyakorlatban” című alfejezetben szerepel.)

Az extrakció elméleti háttere ([12 és 13] alapján)

A radon (illetve bármilyen gáz) folyadékokban való oldhatóságát az Ostwald-koefficienssel (L) lehet számszerűen kifejezni. Ez nem más, mint a légnemű radon és az oldásához szükséges folyadék térfogatának a hányadosa; avagy (ugyanazt másképp fogalmazva) a radon oldatbeli és gázbeli [aktivitás]koncentrációjának a hányadosa:

$$L_{\text{oldószer}} = \frac{c_{\text{oldat}}}{c_{\text{gáz}}} \quad (1)$$

Konkréten a víz Ostwald-koefficiense $L_{\text{víz}} = 0,285$. A koktélokhoz oldószerként használt szerves folyadékok Ostwald-koefficiense tipikusan 10 és 20 közötti szám, pl. $L_{\text{toluol}} = 13,24$. (Az Ostwald-koefficiens a gáz és az oldószer anyagi minőségén túl függ a hőmérséklettől is, ennek jelentőségét például Baradács Eszter [14] vizsgálta. Jelen cikkben az összes említett Ostwald-koefficiens 20 °C-ra és magától értetődően radonra vonatkozik.)

A szerves és vizes fázisok közötti megoszlási hányados (a radon aktivitáskoncentrációinak aránya) kiszámolható a szerves oldószer és a víz Ostwald-koefficienseinek hányadosaként. Ennek értéke a koktélokhoz oldószerként használt szerves folyadékok esetében 30 és 60 között van, például

$$K_{\text{toluol}} = \frac{L_{\text{toluol}}}{L_{\text{víz}}} \approx 44 \quad (2)$$

A megoszlási hányados ismeretében kiszámolható az extrakció elvileg elérhető maximális határfoka, például 1,3 l vízből 20 ml ásványolajba csak a radon 43%-a rázható át, amint azt Fred Leaney és Andrew Herczeg [6] is tapasztalták.

Talán ennél is fontosabb, hogy az Ostwald-koefficiensek segítségével az extrahálóedényben lévő (és az eredményt meghamisítani képes) légbuborék szerepét kvantitatíven figyelembe lehet venni. A víz, a szerves oldószer és a levegő térfogatának ismeretében ugyanis az egyik (célszerűen a szerves) fázis radonaktivitását meghatározva az összes fázis radonaktivitása kiszámolható. (Erre egy konkrét példa a Függelékben szerepel.)

Az extrakció a gyakorlatban

Mivel a radonvesztés csökkentése érdekében el akartunk kerülni mindenféle áttöltést, az extrakciót – Fred Leaney és Andrew Herczeg [6] ötlete alapján – a (műanyag) mintavételi edényben végeztük el; majd a fázisok szétválása után egy, a kupak helyére erősíthető meghajlított cső („csőr”) segítségével, az edény falát óvatosan összenyomva juttattuk a koktélt a küvetába. (A művelet fényképe megtalálható a hivatkozott cikkben.) Eleinte kiürült ásványvizes flakonokat használtunk (ilyesmi számos háztartásban nagy mennyiségben található); előnyben részesítve azokat, amelyeknek sima a fala (pl. a Mizsée ilyen, a Visegrádié illetve a sűrke kupakos Borszékié [felirata szerint: Borsec] nem), hogy minél kisebb legyen a falon megtapadó koktél miatti veszteség.

Sajnos nem sikerült olyan „csört” szereznünk, ami szívárgásmentesen illeszkedett volna a PET palackok nyakára; így egy idő után áttértünk laboratórium spricflaskákra, melyek kiválóan megfelelnek a célnak: olcsón és könnyen beszerezhetőek, a szükséges mértékig áttetszőek és összenyomhatóak, méretük megfelelő (1 l), faluk sima, zárókupakjuk és „csőrük” is pontosan illeszkedik a nyakukra. A koktélnak bizonyos mértékű vesztesége természetesen ebben az esetben is fellép, ezt azonban az extrakció előtt hozzáadott és a

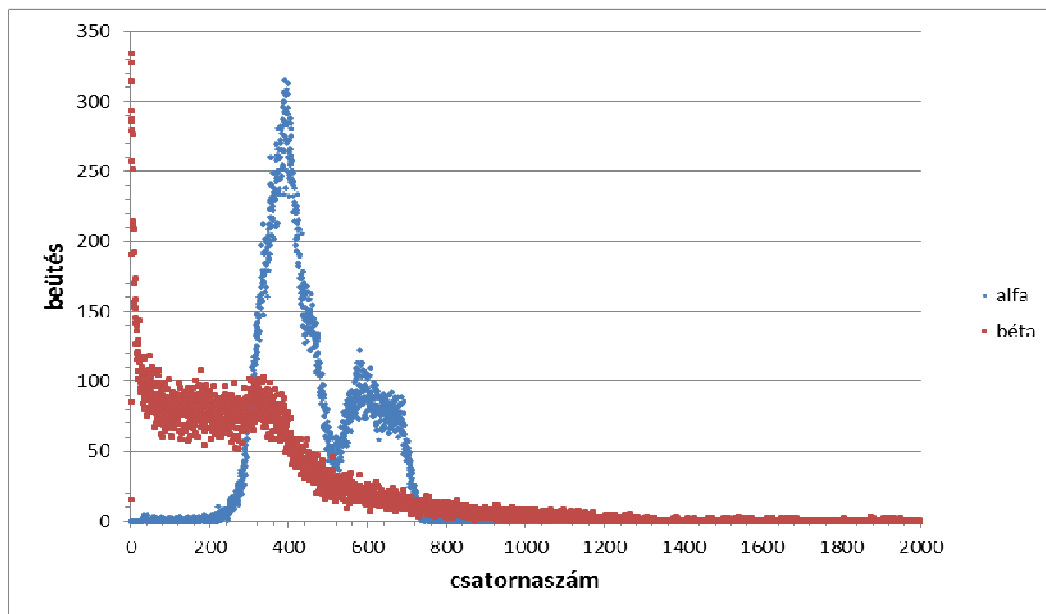
küvetába eljutott, LSC mérésre kerülő koktél tömegének mérésével könnyű korrekcióba venni.

Evvel a technikával akár az extrakció és a fázisok szétválasztása is elvégezhető a terepen, így a liternyi víz helyett elegendő a 20 ml koktélt beszállítani a laboratóriumba. Ez nagy mintaszám és korlátozott szállítási kapacitás esetén lehet fontos; eddigi kísérleteink alapján a mérési eredmény megbízhatósága tekintetében nincs jelentősége.

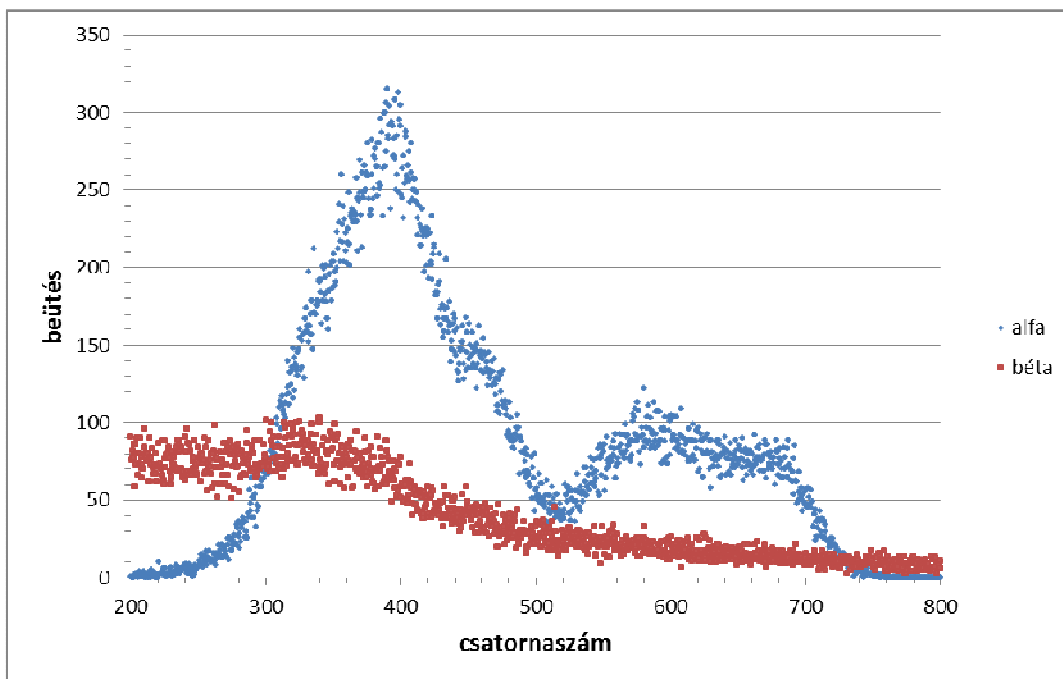
Az LSC mérés

A már tárgyalt kigázosodásnak az LSC mérés során is van jelentősége. Egy kísérletünk szerint lezárt műanyag küvetában a ^{222}Rn és alfa-sugárzó lányainak a számlálási sebessége egy felezési idő alatt nem a felére, hanem kb. a negyedére csökkent. (Egy párhuzamos kísérletben ennél lényegesen csekélyebb mértékű, ám még mindig igen jelentős szivárgást tapasztaltunk.) A kísérletet üveg küvetával és a hozzá tartozó, betétes küvetakupakkal megismételve 4 nap alatt alig (<10%) tapasztaltunk szivárgást. Ez az eredmény is a jól záródó eszközök körültekintő kiválasztására hívja fel a figyelmet.

A mérőminta (azaz az üvegeküvetában található koktél) radontartalmának meghatározásához az LSC-spektrumnak csak az α -tartományát használtuk, jellemzően a 250. és a 850. csatornák közé jelölve ki a ROI-t. Bizonyos mértékig a vízminta számos komponense extrahálódhat a koktélba, ami az LSC mérés során változó kioltást (quench-et) eredményez. Ezért a spektrum alakja nem állandó, minden spektrumot egyedileg kell kiértékelni. Egy tipikus spektrumot mutat a 2. ábra, ugyanazon spektrum középső (a kiértékelés szempontjából releváns) tartományát pedig kinagyítva a 3. ábra. Az ábrákon jól látszik, hogy míg a ^{222}Rn és a ^{218}Po csúcsai egybeolvadnak, addig a ^{214}Po csúcsa eléggé elkülönül. A detektálási határfokot a három (egyenként 100%-os α -gyakoriságú) radionuklidra és a (^{241}Am -mal meghatározott) 2%-os α - β -áthallásra figyelemmel 294%-nak vettük. „Vakmintaként” tiszta koktélt mérve megállapítottuk, hogy 60 perces mérés esetén a kimutatási határ 2 mBq, ami eredeti mintára átszámolva néhány mBq/l-t jelent.



2. ábra. Egy tipikus mérőminta spektruma



3. ábra. A 2. ábrán látható spektrumnak a kiértékelés szempontjából lényeges tartománya

Mivel ma már kevesen használnak saját készítésű koktélt, megvizsgáltuk azt is, hogy anélkül hogyan végezhető el az analízis. Az ismertetett eljárást a szabvány szerinti koktél helyett toluóllal ismételtük meg (egyebekben változatlanul hagytuk), majd az LSC mérés előtt hozzáadtunk 5 ml Ultima Gold LLT nevű, Perkin Elmer gyártmányú, vízzel elegyedő folyadékszintillációs koktélt. Az eredmények lényegében megegyeztek a korábban kapottakkal, tehát a módszer így is működik. Ezt azért tarjuk fontosnak, mert míg PPO-val illetve POPOP-pal csak kevesen rendelkeznek, addig a toluol viszonylag könnyen hozzáférhető vegyszer, segítségével a mintavételt és az extrakciót egy szerényebben felszerelt laboratórium is el tudja végezni.

EREDMÉNYEK ÉS ÖSSZEGEZÉS

A 2. táblázatban foglaltuk össze a Rudas Ivócsarnok gyógyvizeinek elemzése során kapott eredményeket. A tárgyalt módszerrel mért értékek jól illeszkednek az akkreditált módszerrel meghatározott saját eredményeinkhez, azonban nincsenek igazán összhangban mások eredményeivel. E helyen azonban fel kell hívnunk a figyelmet arra, hogy saját vizsgálatainkat az elmúlt 1-2 évben végeztük, míg az irodalmi értékek több évvel ez előtről származnak és egymástól is jelentős mértékben eltérnek. Elképzelhetőnek tartjuk, hogy ezeknek a gyógyvizeknek a radontartalma évtizedes időskálán ennyit változzék annak ellenére, hogy Resch Anita néhány évre kiterjedő vizsgálata [9] szerint radontartalmuk állandó.

2. táblázat. A Rudas Ivócsarnok gyógyvizeinek ^{222}Rn -aktivitáskonzentrációja [Bq/l]. A „hivatalos érték”-eket az Ivócsarnokban kifüggesztett [15] „radiumemanatio”-kból számítottam (1 eman = 3,7 Bq/l), származási idejük sajnos ismeretlen

Gyógyvíz	Saját mérés (a cikkben tárgyalt módszerrel)	Saját mérés (az akkreditált módszerrel)	Resch Anita [9] (2005)	Resch Anita [9] (2008/9)	„Hivatalos érték”
Attila	294±35	193—342	384±44	377±61	218
Hungária	207±21	188—257	303±26	328±66	272
Juventus	98±34	96—117	139±12	152±25	209

Olyan mintákat is vizsgáltunk, amelyekben a ^{222}Rn a mintában lévő ^{226}Ra -ból keletkezett, tehát bomlási egyensúlyban volt vele. Az eredmények (melyek a 3. táblázatban szerepelnek) az elvárt értékek alatt voltak. Az eltérést sejtésünk szerint az magyarázza, hogy a minták tárolására szolgáló ásványvizes flakonokból a több hetes „belenövési” idő alatt a radon egy része megszökött.

3. táblázat. Ismert ^{226}Ra -tartalmú vizek elemzési eredményei [Bq/l]. A ^{222}Rn aktivitáskonzentrációját a cikkben tárgyalt módszerrel, a ^{226}Ra aktivitáskonzentrációját bepárlás és hamvasztás után γ -spektrometriával határoztuk meg

Víz minta	^{222}Rn	^{226}Ra
Régi Hungária gyógyvíz	387±45	447±18
Kék kupakos Borszéki ásványvíz	170±38	238±17

Összegzésképpen elmondhatjuk, hogy egy, vízben oldott ^{222}Rn meghatározására szolgáló szabványt a szakirodalom és saját vizsgálatok segítségével igyekeztünk nagyszámú minta terepi mérésére alkalmasabbá tenni. Ennek keretében azonosítottuk az eljárás legfontosabb gyengéjét, a radon szökését. Megakadályozására (vagy legalábbis visszaszorítására) a következő technikákat javasoljuk alkalmazni: a Csige Istvánék-féle mintavételt, a műanyag mintavevő edényben történő extrakciót, betétes kupakkal ellátott üvegküvetta használatát, a koktélnak a küvetta juttatására pedig „csőr” alkalmazását. Megmutattuk, hogy hogyan lehet számításba venni az extrakció során a vizes fázisban maradó, illetve a gáztérbe kerülő radon mennyiségét. A feltételezett felhasználói igények kielégítésére ötletet adtunk a szállítandó folyadék mennyiségének csökkentésére (az extrakciónak a terepen történő elvégzésével), továbbá a házilagos koktélkészítés elkerülésére (toluol és a kereskedelemből beszerezhető koktél alkalmazásával).

IRODALOM

- [1] A Tanács 2013/51/EURATOM irányelve (2013. október 22.) a lakosság egészségének az emberi fogyasztásra szánt vízben található radioaktív anyagokkal szembeni védelmére vonatkozó követelmények meghatározásáról. Az Európai Unió Hivatalos Lapja, 2013.11.7., L296/12-21. oldal
- [2] A Tanács 2013/59/EURATOM irányelve (2013. december 5.) az ionizáló sugárzás miatti sugárterhelésből származó veszélyekkel szembeni védelmet szolgáló alapvető biztonsági előírások megállapításáról, valamint a 89/618/Euratom, a 90/641/Euratom, a 96/29/Euratom, a 97/43/Euratom és a 2003/122/Euratom irányelv hatályon kívül helyezéséről. Az Európai Unió Hivatalos Lapja, 2014.1.17., L13/1-73. oldal

- [3] International Atomic Energy Agency [Nemzetközi Atomenergia Ügynökség] (1996): Safety Series #115. International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources. Vienna [Bécs]
- [4] LBNL Isotopes Project - LUNDS Universitet. WWW Table of Radioactive Isotopes. <http://ie.lbl.gov/toi/> Letöltve 2015. január 26-án
- [5] <http://www.nat.hu/okiratok/NAT-1-0969-2014-01RO.pdf> Letöltve 2015. május 11-én
- [6] F. W. Leaney and A. L. Herczeg (2006): A rapid field extraction method for determination of radon-222 in natural waters by liquid scintillation counting. Limnology and Oceanography: Methods 4, 254-259 <http://www.aslo.org/lomethods/free/2006/0254.pdf> Letöltve 2014. november 25-én
- [7] MSZ 19383:1988 Vízben lévő rádium-226 és radon-222 aktivitáskoncentrációjának meghatározása folyadékszintillációval
- [8] <http://www.nat.hu/okiratok/NAT-1-1714-2012-02MRO1.pdf> Letöltve 2015. május 11-én
- [9] Resch Anita (2009): A gellérthegyi radonanómália vizsgálata. Diplomamunka, ELTE
- [10] E Baradács, I Hunyadi, Z Dezső, I Csige, P Szerbin (2001): ^{226}Ra in geothermal and bottled mineral waters of Hungary. Radiat Meas 34 (1-6) 385-390. DOI: 10.1016/S1350-4487(01)00191-3
- [11] Csige István személyes közlése, 2015. április 22.
- [12] M. G. Cantaloub, J. F. Higginbotham, L. Semprini (1997): The determination of Rn partition coefficients for several liquid scintillation cocktails. 43rd Bioassay Analytical & Environmental Radiochemistry (BAER) Conference, Charleston, Nov 9-13 <http://www.lanl.gov/BAER-Conference/BAERCon-43p014.pdf> Letöltve 2014. november 24-én
- [13] M. Cantaloub (2001): Aqueous-Organic Partition Coefficients for Rn-222 and Their Application to Radon Analysis by Liquid Scintillation Methods. MSc Thesis <https://ir.library.oregonstate.edu/xmlui/bitstream/handle/1957/32870/CantaloubMichaelG2001.pdf?sequence=1> Letöltve 2014. november 25-én
- [14] Baradács Eszter Mónika (2002): Hévízek és ásványvizek radon- és rádiumtartalma. Doktori (PhD) értekezés, Debreceni Egyetem
- [15] http://gellertthegyonline.network.hu/blog/gellertthegy_online_klub_hirei/kincset-ero-gellertthegyi-forrasviz-egyben-elarheto-gyogyito-ivokura-a-rudas-ivocsarnokban Letöltve 2015. május 13-án

FÜGGELÉK (SZÁMOLÓS PÉLDA)

A cikkben említettük, hogy az Ostwald-koeficiensek segítségével az extrahálóedényben lévő (és az eredményt meghamisítani képes) légbuborék szerepét kvantitatíven figyelembe lehet venni; ugyanis a víz, a szerves oldószer és a levegő térfogatának ismeretében az egyik (célszerűen a szerves) fázis radonaktivitását meghatározva az összes fázis radonaktivitása kiszámolható. Erre mutatunk be itt egy konkrét példát.

Az LSC mérés során a megfelelő csatornahatárok közötti α -tartományban a 20 ml-es mérőminta számlálási sebessége (I_m) 17,08 cpm, a háttéré (I_h) 0,13 cpm volt. Figyelembe véve, hogy a detektálási hatásfok (η) 294%, és 1 perc egyenlő 60 másodperccel, a mérőminta aktivitása:

$$A_m = (I_m - I_h) / \eta = (17,08 \text{ cpm} - 0,13 \text{ cpm}) / 294\% = 0,0961 \text{ Bq.}$$

Ha ezt az aktivitást besorozzuk az extrakcióhoz bemért ($V_t = 25 \text{ ml}$) és az LSC küvettában megmért ($V_m = 20 \text{ ml}$) toluolos koktél térfogatának arányával, akkor megkapjuk, hogy az extrakció során mekkora volt a toluolos koktélfázis aktivitása:

$$A_t = A_m * V_t / V_m = 0,0961 \text{ Bq} * 25 \text{ ml} / 20 \text{ ml} = 0,1201 \text{ Bq}.$$

Innentől kezdve számításaink ez extrakciós edényben lévő 3 fázisra (toluolos, vizes és gáz) vonatkoznak. A toluolos fázis aktivitáskoncentrációja:

$$c_t = A_t / V_t = 0,1201 \text{ Bq} / 25 \text{ ml} = 0,004804 \text{ Bq/ml}.$$

Mivel a radon megoszlási hányadosa (K) a toluol és a víz között 44, a vizes fázisban a radon aktivitáskoncentrációja:

$$c_v = c_t / K = 0,004804 \text{ Bq/ml} / 44 = 0,0001092 \text{ Bq/ml}.$$

A vizes fázis térfogatát ($V_v = 1500 \text{ ml}$) figyelembe véve megkapjuk a vízben oldva maradt radon aktivitását:

$$A_v = c_v * V_v = 0,0001092 \text{ Bq/ml} * 1500 \text{ ml} = 0,1638 \text{ Bq}.$$

A víz aktivitáskoncentrációjából és Ostwald-koefficienséből ($L_v = 0,285$) számolhatjuk ki a gáztér aktivitáskoncentrációját:

$$c_g = c_v / L_v = 0,0001092 \text{ Bq/ml} / 0,285 = 0,0003831 \text{ Bq/ml}.$$

A gázbuborék térfogatát (V_g) úgy kapjuk meg, hogy az edény (csapvíz és mérőhenger alkalmazásával meghatározott) térfogatából ($V_e = 1555 \text{ ml}$) kivonjuk a vizes és a toluolos fázisok térfogatát:

$$V_g = V_e - V_v - V_t = 1555 \text{ ml} - 1500 \text{ ml} - 25 \text{ ml} = 30 \text{ ml}.$$

A gázbuborékban lévő radon aktivitása pedig a gáztér aktivitáskoncentrációjának és térfogatának a szorzata:

$$A_g = c_g * V_g = 0,0003831 \text{ Bq/ml} * 30 \text{ ml} = 0,01149 \text{ Bq}.$$

A mintában eredetileg lévő összes radonaktivitás (A_{δ}) a toluolos fázis, a vizes fázis és a gázbuborék aktivitásának összegeként adódik:

$$A_{\delta} = A_t + A_v + A_g = 0,1201 \text{ Bq} + 0,1638 \text{ Bq} + 0,01149 \text{ Bq} = 0,2954 \text{ Bq}.$$

Ebből pedig az eredeti mintának (amit az extrakcióhoz vizes fázis néven mértünk be) az aktivitáskoncentrációja:

$$c = A_{\delta} / V_v = 0,2954 \text{ Bq} / 1500 \text{ ml} = 0,0001969 \text{ Bq/ml} \approx 197 \text{ mBq/l}.$$