

SUGÁRVÉDELEM

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

**IX. Évfolyam 1. szám
2016**

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

Az általános környezeti veszélyhelyzet megállapítása és a megállapítás bizonytalansági tényezői

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

¹MTA Energiatudományi Kutatóközpont, Budapest

²MVM Paksi Atomerőmű Zrt., Paks
deme@aeki.kfki.hu

A kézirat beérkezett: 2016.06.16.

Közlésre elfogadva: 2016.07.04.

Determination of the general environmental emergency and uncertainties of the calculations. Due to recommendation of the International Atomic Energy Agency general environmental emergency in the vicinity of a nuclear installation should be announced if the γ -dose rate due to contamination of the ground surface exceeds 1 mSv/h at 1 m above the ground.

Our paper deals with the uncertainty assessment of several parameters affecting occurrence of general emergency at a given release, e.g. determination of the γ -dose rate due to deposited component, calculation of the dose rate at the plume centerline and extrapolation of data using meteorological parameters.

Final goal of the work is elaboration of methods to estimate uncertainties at the calculation of the general emergency situation.

Keywords: severe accident, general emergency, environmental monitoring, uncertainties.

A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség ajánlása szerint egy nukleáris létesítmény környezetében akkor jön létre a sürgős lakossági intézkedést is megkövetelő általános sugárzási veszélyhelyzet, ha a radioaktív anyagok légköri kibocsátása olyan talajfelszíni szennyezettséget okoz, hogy annak γ -sugárzása révén 1 méteres magasságban 1 mSv/h vagy azt meghaladó dózisteljesítmény jön létre.

Cikkünkben ismertetjük azokat a számításokat, amelyekhez kapcsolódóan megvizsgáltuk a veszélyhelyzet megállapítását befolyásoló egyes bizonytalansági tényezőket, mint például a kiüledési hányad megállapítása, a csóvatengelyi dózisteljesítmény meghatározása és nagyobb távolságra történő extrapolációja a meteorológiai paraméterek alapján.

A munka végcélja az, hogy a döntéshozók részére információt adjon egy esetleges általános veszélyhelyzet megállapításánál fellépő bizonytalansági tényezőkről.

Kulcsszavak: súlyos baleset, általános veszélyhelyzet, környezeti mérés, bizonytalanság

BEVEZETÉS

A környezetet érintő súlyos atomerőműi baleseteknél nagyon fontos, hogy egy esetleges veszélyhelyzet létrejöttét minél rövidebb idő alatt meg lehessen állapítani és a szükséges védőintézkedéseket meg lehessen határozni.

A rendeleti szabályozásban [1] a beavatkozási szint elkerülhető dózisban van kifejezve. E szerint védelmi intézkedést kell foganatosítani, ha az elkerülhető sugárterhelés meghaladja az intézkedésnek megfelelő beavatkozási szintet. Az elkerülhető dózis meghatározásához szükség van a forrástag ismeretére, radioökológiai adatbázisra és a számítás elvégzésére alkalmas terjedésszámító programra. Alapvető nehézséget okoz, hogy a forrástag megállapítása rendkívül bizonytalan és ennek alapján a számított sugárzási helyzet, valamint az elkerülhető dózis számértéke is.

Az általános veszélyhelyzet kihirdetése az alábbiak alapján lehetséges [2]:

(1) a reaktor (vagy nagy mennyiségű frissen kiszedett kiégett üzemanyag) meglévő vagy prognosztizált sérülése;

(2) a sürgős óvintézkedések bevezetésére vonatkozó származtatott intézkedési szintet a létesítményen kívül meghaladó sugárzási szint detektálása és

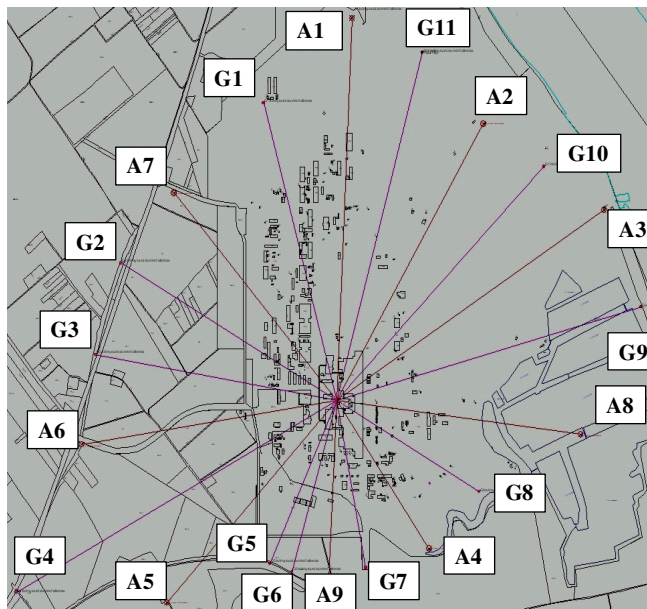
(3) olyan szándékos cselekmény elkövetése, amely veszélyezteti a kibocsátás megakadályozása szempontjából kritikus rendszerek működését vagy ellenőrizhetőségét.

Közleményünkben a (2) esettel foglalkozunk. Korábbi cikkünkben [3] bemutattuk, hogy a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség a sürgős óvintézkedések megfontolásához mérhető paramétereken alapuló származtatott intézkedési szinteket javasol, amely esetünkben azt jelenti, hogy általános sugárzási veszélyhelyzet akkor jön létre, ha a talajfelszín szennyezettsége révén az 1 méter magasan mérhető γ -sugárzás dózisteljesítménye eléri az 1 mSv/h értéket [2]. A jelenlegi hazai szabályozás is a γ -sugárzás dózisteljesítményén alapul [4]. Ennek a megállapítására a Paksi Atomerőmű esetében legközvetlenebbül az erőmű környezetében elhelyezett, γ -dózisteljesítményt mérő szondák adatai használhatók fel.

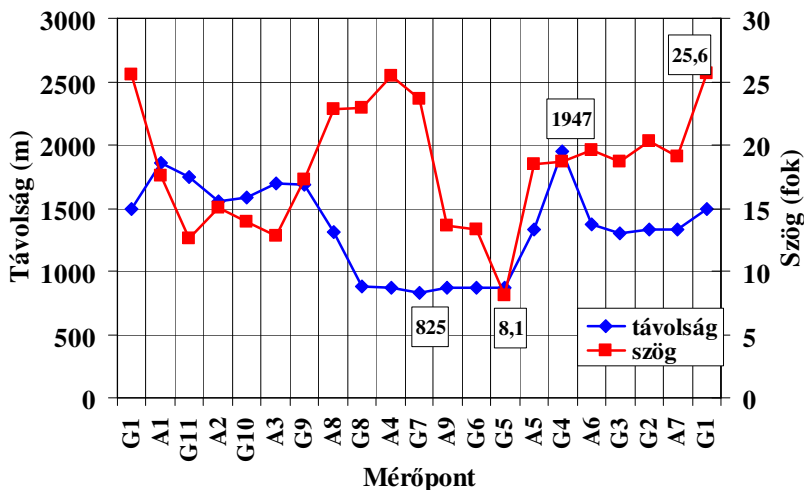
Cikkünkben ismertetjük azt a számítási módszert, amely segítségével a sugárzási veszélyhelyzet meghatározása az online mért γ -dózisteljesítmény és meteorológiai adatok alapján valós időben megoldható. Ez a módszer kiküszöböli a forrástag megállapításának igen jelentős bizonytalanságát és ennek révén a veszélyhelyzet megállapításának bizonytalanságát is nagymértékben csökkenti.

A KÖRNYEZETI γ -SUGÁRZÁS MÉRŐPONTOK JELLEMZŐI

Az erőművet körbevevő 20 darab γ -szonda telepítése két lépcsőben történt. Először az erőműhöz legközelebb eső települések irányába épültek ki a légszennyezettség távmérésére is szolgáló, ún. „A” típusú állomások, majd a későbbiekben a lefedetlen irányokba kiegészítő, csak a γ -sugárzást mérő G típusú állomások (1. ábra). A mérőpontok távolságát az erőmű két szellőkéményének felezőpontjától és az egymás mellett lévő mérőpontok közötti szöveget a 2. ábra mutatja. A távolságok és a szögek értékének szórását a terepviszonyok okozták.

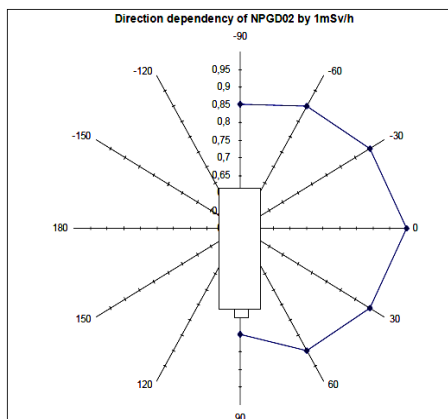


1. ábra. A mérőpontok elhelyezkedése az erőmű környezetében.



2. ábra. A mérőpontok távolsága az erőmű két szellőkéményének felezőpontjától és a szomszédos állomások közötti szög. A keretben a minimális és maximális értékek szerepelnek.

Mind az A, mind a G állomástípuson van egy-egy, a γ -sugárzás dózisteljesítményét 10 nSv/h–10 Sv/h méréstartományban mérő, BITT gyártmányú γ -szonda (3. ábra).



3. ábra. A γ -sugárzás dózisteljesítményét mérő, BITT gyártmányú szonda (bal oldalon) és irányfüggése (jobb oldalon)

Az általános veszélyhelyzet megállapításánál az alapfeladat az, hogy a 20 γ -sugárzás detektor jelzése alapján meg lehessen állapítani a detektoroknál a talajfelszín szennyezettségéből eredő dózisteljesítményt, majd a meteorológiai adatokat felhasználva az effektív csóvatengelynek megfelelő maximális γ -dózisteljesítményt, és ennek alapján a 10 km-es távolságig várható dózisteljesítmény eloszlást. A 10 km-es távolságot azért tekintjük e módszer felső határának, mert ennél nagyobb távolságoknál a terjedés meghatározásánál már az Országos Meteorológiai Szolgálat numerikus meteorológiai előrejelzését célszerű használni.

A KIÜLEPEDÉSBŐL EREDŐ γ -DÓZISTELJESÍTMÉNY SZÁMÍTÁSA

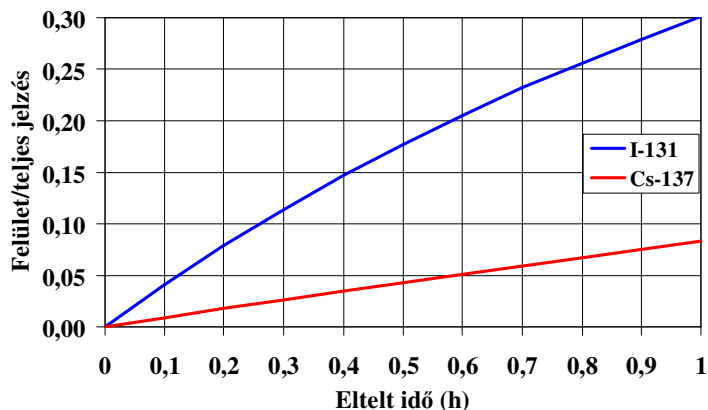
A számítások logikai vázlatát a 4. ábra mutatja.

A számítások során először meg kell határozni az egyes mérőpontokon a kiülepedésből származó γ -dózisteljesítményt. A kiülepedés sebessége függ a radionuklidok típusától (nemesgáz, szerves jód, elemi jód vagy aeroszol), a talajfelszín jellemzőitől (vízfelszín, növénytakaró), valamint a meteorológiai helyzettől (csapadék). Mind a típusok egymáshoz képesti aránya, mind a kiülepedési tényezők összetettsége miatt a felhő/kiülepedés γ -dózisteljesítmény arányt csak nagyon nagy bizonytalansággal lehet számítással meghatározni. Ezért a kiülepedés meghatározására azt a tényt használjuk ki, hogy a kiülepedés γ -dózisteljesítménye időben nem fluktuál, hanem a kibocsátás tartama alatt monoton nő, ugyanakkor a felhőből eredő γ -dózisteljesítmény a felhő pozíciójának folyamatos változása miatt időben fluktuál. Annak érdekében, hogy a fluktuáció becslésére minél előbb megfelelő statisztikájú adathalmaz álljon rendelkezésre a γ -szondák jelenlegi 10 perces adatai helyett a 0,5–1,0 perces adatait kívánjuk felhasználni.



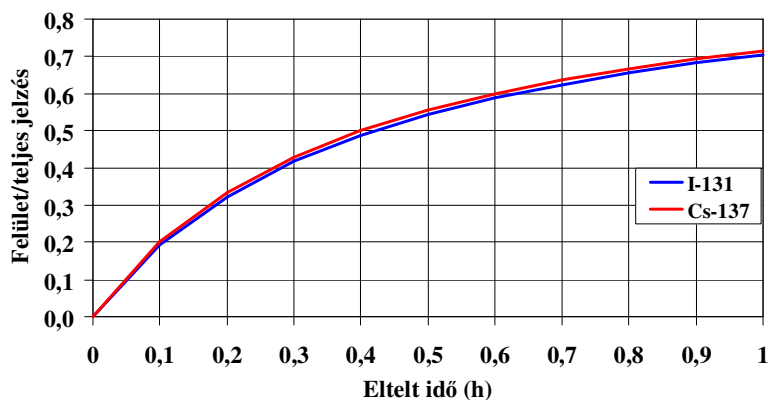
4. ábra. A kiülepedésből származó γ -dózisteljesítmény számítása 10 km-es távolságig

Egy egyszerű, COSYMA program [5] alapértelmezett paramétereivel végzett példaszámítással szeretnénk ennek jelentőségét bemutatni. A kibocsátás kezdetén a felhő γ -sugárzása dominál. Száraz időben az 1. óra végén az azonos aktivitású elemi formájú ^{131}I és az aeroszol formájú ^{137}Cs esetén a száraz kiülepedés adott nuklidra vonatkozó teljes jelzés 30, illetve 8%-át adja. (5. ábra).



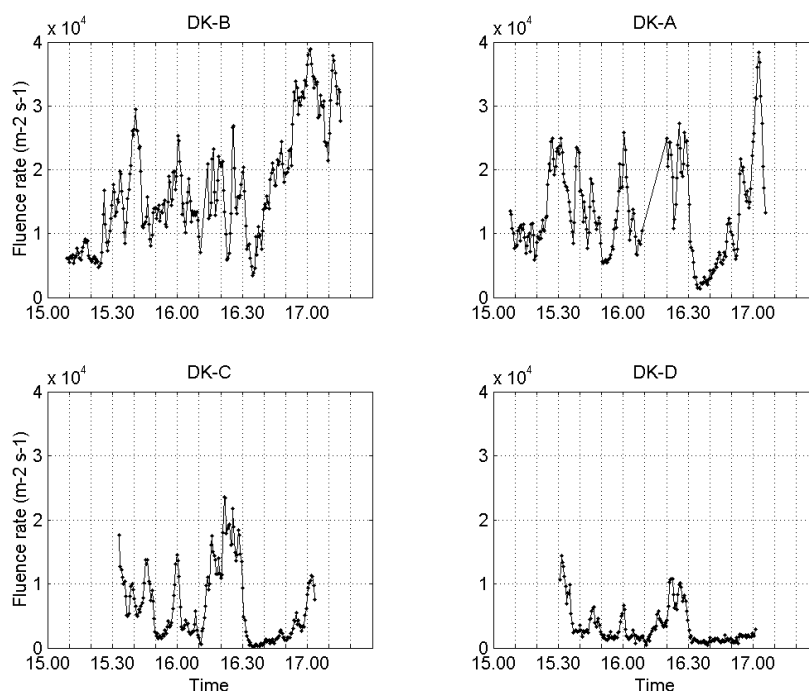
5. ábra. A detektor jelzésének a felületi talajszennyeződésből eredő hányada az adott nuklid teljes jelzéshez képest száraz időjárásnál a kibocsátás kezdetétől eltelt idő függvényében, azonos aktivitású elemi formájú ^{131}I és aeroszol formájú ^{137}Cs esetén

Esős időnél a kiülepedés (kimosás) részaránya sokkal nagyobb lesz, mint száraz időben, már 5 mm/h intenzitású eső mintegy 71%-ra emeli a kiülepedési hányadot (6. ábra). Ez utóbbi egyben azt is jelenti, hogy azonos nagyságú kibocsátásnál a talajfelszín szennyezettségéből származó dózisteljesítmény is jelentősen nő.



6. ábra. A detektor jelzésének felületi talajszennyeződésből eredő hányada a teljes jelzéshez képest 5 mm/h intenzitású esőnél a kibocsátás kezdetétől eltelt idő függvényében azonos aktivitású, elemi formájú ^{131}I és aeroszol formájú ^{137}Cs esetén

A felhő pozíciójának időbeli változásának hatására létrejövő γ -dózisteljesítmény ingadozást szemlélteti a 7. ábra, amely egy reaktor kéményén át kibocsátott ^{41}Ar által létrehozott γ -sugárzás intenzitásának időfüggését mutatja 30 s-os időbeli felbontással négy, a csóva tengelyére merőlegesen elhelyezett B, A, C és D sorrendű detektorral mérve. A terjedésszámításban használt átlagos, szélirány (azaz amerre a szél fúj) az ábrán az első, a B detektor irányába mutatott [6].

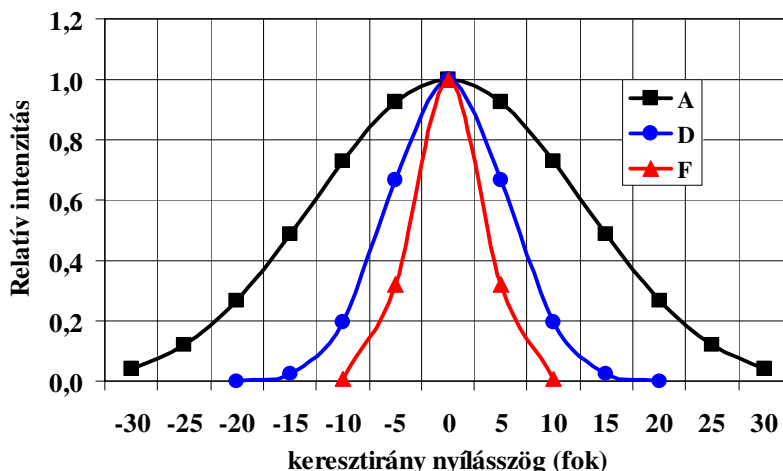


7. ábra. Egy reaktorkéményből kibocsátott ^{41}Ar csóva által létrejött γ -sugárzás intenzitása 30 s-es időfelbontással [6]

A 7. ábra alapján látható, hogy a γ -sugárzás intenzitásának – ami arányos a dózisteljesítmény mérő jelzésével – minimális értéke lényegesen kisebb, mint az átlaga. Ha a minimális értéket tekintjük a kiülepedésnek, akkor a kiülepedést kissé túlbecsüljük, de ez a hiba a kiülepedés részarányának növekedésével arányosan csökken.

A továbbiakban feltételezzük, hogy a kibocsátás a reaktorcsarnok tömítetlenségein át történik. A kéménykibocsátás esetét e tanulmányban azért nem vizsgáljuk, mert ebben az esetben mód van az aeroszolok és a jódnagy hatásfokú szűrésére, ezért a környezeti dózisek lényegesen kisebbek, mint a szűretlen épületkibocsátás esetén [7]. Ha a kibocsátás az épület falainál történik, akkor az épület által okozott levegőturbulencia a csóva kezdeti kiszélesedését okozza.

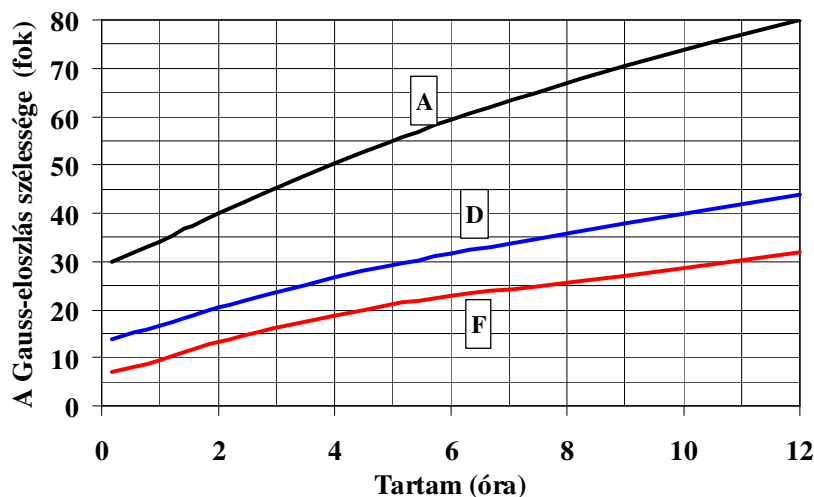
Az A, D és F Pasquill-kategóriákra vonatkozó – a reaktorépület diszperziós hatását is figyelembe vevő – keresztirányú anyag-eloszlásokat 1,5 km-es távolságra a 8. ábra mutatja. A számításokat a PC COSYMA programmal [5] végeztük. Az adatok alapján megállapítható, hogy a γ -szondák közötti átlagos, 18° -os szögnél (ez a (-9°) – $(+9^\circ)$ tartomány) az A Pasquill-kategória esetén – ha a csóva a két szonda közötti felezővonalban halad el, akkor a maximum 0,8-ad része lesz mérhető, D-kategória esetén ez az érték 0,3, míg F-kategóriánál 0,1. Ugyanakkor a 25° -os szögtávolságú szondapároknál az F-kategória esetén nem kapunk értelmezhető jelzést.



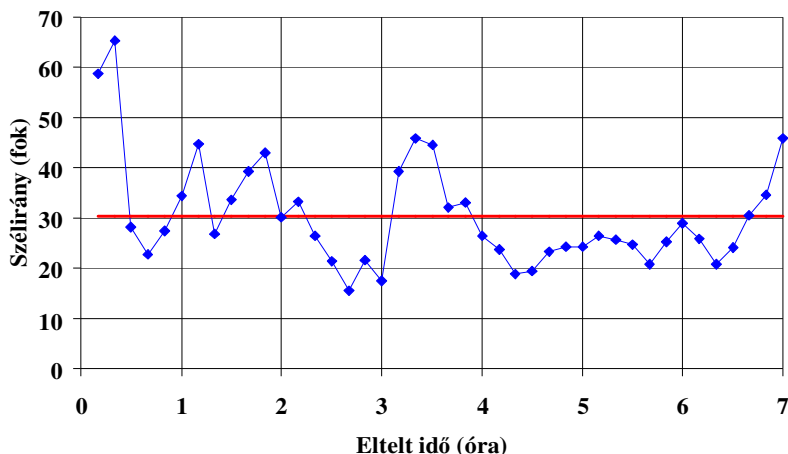
8. ábra. A keresztirányú relatív intenzitás eloszlás a forrástól 1,5 km-es távolságban A, D és F Pasquill-kategóriákra.

Az előzőekben megadott értékek rövididejű (10 perces) kibocsátásra vonatkoznak. A tapasztalatok szerint huzamosabb kibocsátás esetén a szélirány nem marad állandó és ennek következtében az eloszlásgörbe szélessége az észlelési idővel monoton nő. Ezt a növekedést Clarke [8] adatait felhasználva a 9. ábra adja meg. Ez alapján megállapítható, hogy a maximális, 25°-os szondatávolságnál a csúcserték felét az A kategória esetében már a kibocsátás kezdetén eléri a mért érték, D kategóriánál ehhez 3, F kategóriánál pedig 7 óras kibocsátásra van szükség. Meg kell jegyezni, hogy a teljes feszültség-kimaradás mellett bekövetkező súlyos balesetknél a kibocsátási idő ennél hosszabb, elérheti a 12–24 órát is, mert ennyi időre lehet szükség a baleset elhárításához.

Egy adott balesetnél a csóva kiszélesedésének meghatározásához a ténylegesen mért szélirányváltást célszerű alapul venni. Egy júliusi éjszaka 10 perces átlagolású 7 órás szélirány időfüggést mutat a 10. ábra. A 7 órás időtartam alatt a szélirány szórása (σ_y) 10,7° volt

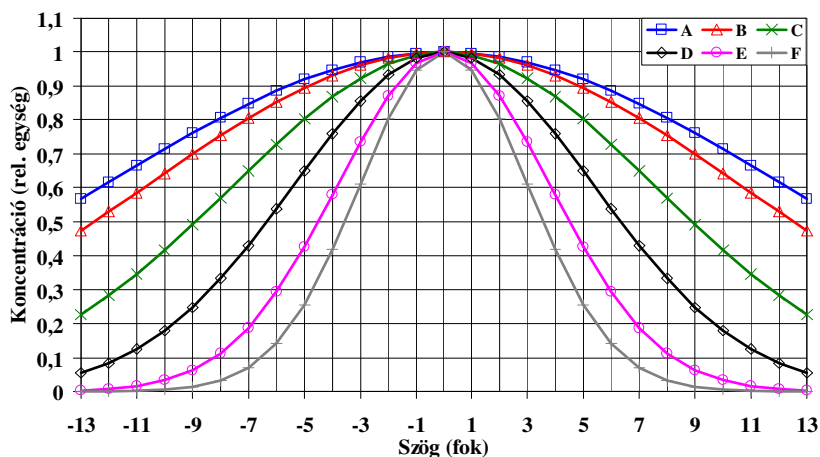


9. ábra. A Gauss-eloszlás félmagasságban vett szögértékének változása a kibocsátási idő függvényében A, D és F Pasquill-kategóriákra



10. ábra. A 20 m magasan a meteorológiai toronnyal 7 óra alatt mért 10 perces szélirányok (kék). Az átlagos szélirány $30,4^\circ$ (piros vonal), a szélirány szórása (σ_y) $10,7^\circ$

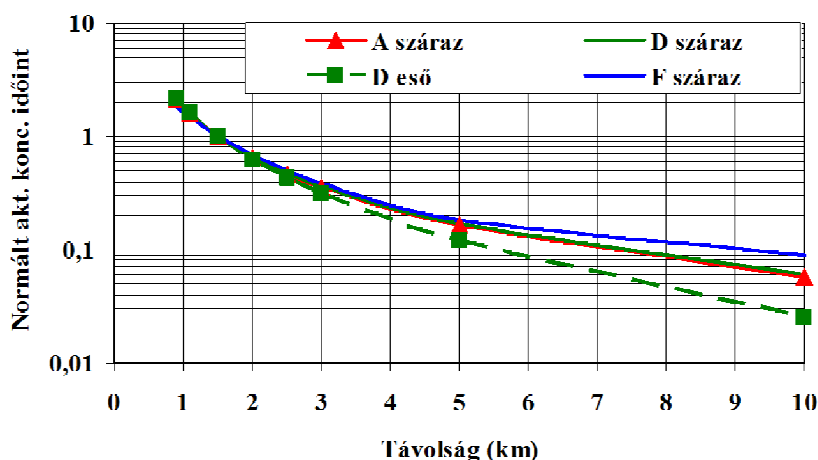
Az A-F kategóriák keresztirányú eloszlása a 7 órás $10,7^\circ$ -os szélirány szórás figyelembe vételével a 11. ábra szerint alakul. Ha az adott időszakban az E kategória volt, akkor erre a kategóriára az eredő σ_y érték 11° -nak felelt meg, amely érték megegyezik a rövididejű kibocsátásnál a B kategóriának.



11. ábra. Az A–F kategóriák keresztirányú eloszlása a 7 órás szélirány szórás figyelembe vételével

A továbbiakban tételezzük fel, hogy a 1,5 km-es távolságban a fennálló Pasquill-kategóriából és a szélirány fluktuációból – megfelelő illesztő programmal – meghatároztuk az adott időpontra vonatkozó csóvatengelyi, a talajfelszíni szennyezettségből eredő γ -dózisfeljesítményt. A következő lépés ennek az értéknek az extrapolálása nagyobb távolságokra. Az így elvégzett extrapoláció maximális távolsága véleményünk szerint legfeljebb 10 km lehet, mert ennél nagyobb távolságra az egyenes vonalú terjedés már kétséges. Ezen felül figyelembe kell venni, hogy a felületi szennyezettség a távolság mintegy -1,5-szeres kitevőjű hatványfüggvénye szerint csökken. Ez azt jelenti, hogy a távolság megkétszerezése esetén a sugárzás intenzitása az eredeti érték egyharmadára csökken, tehát a védőintézkedések szükségessége kevésbé várható, mint a forráshoz közelebbi területeken.

Megvizsgáltuk, hogy az 1,5 km-es érték extrapolációs függvénye hogyan függ a Pasquill-kategóriától és a csapadéktól. Az extrapolációs függvényeket A, D és F Pasquill-kategóriákra, száraz időre és a D kategóriára 10 mm/h intenzitású esőnél a 12. ábra mutatja. (A és F kategóriánál derült az égbolt, így ezek esetében esővel nem számoltunk.) A számértékek alapján a 10 mm/h intenzitású esőnél a nagymértékű csóvaszegényedés következtében a 10 km-re extrapolált 1,5 km-es érték csak 0,4-ed része a száraz időben várható értéknek, végeredményben intenzív eső révén a szennyeződés az 1,5 km-es értéknek csak mintegy 3%-a lesz.



12. ábra. A talajfelszín szennyezettségének távolságfüggése A, D és F Pasquill-kategóriákra, száraz időre és 10 mm/h intenzitású esőnél D-kategóriára

A SZÁMÍTÁSOK BIZONYTALANSÁGA

Az előzőekben ismertetett számításoknál kiindulásként szükséges ismerni a γ -szondákkal mért, a talajfelszín szennyezettségéből eredő dózisteljesítményt, és a Pasquill-kategóriát, valamint a csapadék intenzitását. (A szélirányt csak tájékoztató adatként használjuk.) A kiülepedésből származó dózisteljesítmény csak egy hányada a teljes dózisteljesítménynek. Ennek meghatározása történhet számítással, de ennek bizonytalansága – különösen száraz időben és a kibocsátás kezdetén – nagyon nagy [3], ezért nem is használjuk fel módszerünkben. Sokkal jobb eredményt érhetünk el, ha a mért érték fluktuáló részét nem vesszük figyelembe, mert ezt a komponenst a felhő γ -sugárzásának következményének tekintjük. E tényező bizonytalansága – nem jelentős – felülbecslést jelent.

A legnagyobb bizonytalanságot a csóvatengelyi dózisteljesítmény meghatározása okozza. Különösen nagy a bizonytalanság stabil (E, F) Pasquill-kategória esetén. Ez a bizonytalanság a kibocsátási idő növekedésével csökken, 6–8 óra elteltével már csak abból ered, hogy a keresztirányú eloszlás nem a mérések alapján feltételezett Pasquill-kategóriából számítottnak felel meg. További, de viszonylag kisebb bizonytalanságot jelent a 1,5 km-re számított csóvatengelyi dózisteljesítmény extrapolálása nagyobb, 10 km-ig terjedő távolságokra. Ebben az esetben az extrapolációs függvény alig függ a Pasquill-kategóriától, de érzékeny a csapadékra. Az eső hatása a csóva szegényedésében nyilvánul meg. (10 mm/h intenzitású esőnél a 10 km-re extrapolált talajszennyezettség csak 40%-a lesz a száraz időre megadott értéknek.) A γ -szondák tényleges távolságára korrekciót lehet elvégezni, így ezzel a bizonytalansággal nem kell számolni.

A bizonytalanságokat általánosan nem lehet számszerűen megadni. A legnagyobb várható bizonytalanság esetében a számított eredmény a 0,3–3-szoros szorzó tartományba esik, ez más

módszereknél, például az erőmű feltételezett műszaki állapotából számítottnál sokkal kedvezőbb. A bizonytalanságok számítását egy későbbiekben kidolgozandó terjedésszámítási program részévé kell tenni.

KÖVETKEZTETÉSEK

A tanulmányban leírt módszer nem teszi szükségessé a baleseti forrástag nagy bizonytalanságú becslését, hanem a környezeti γ -szondák mérési adatai alapján határozza meg a 10 km-ig terjedő távolságokra a talajfelszín szennyezettségéből eredő csóvatengelyi γ -sugárzás dózisteljesítményt súlyos baleseti, épületen át történő kibocsátásnál. A számítások bizonytalansága a kibocsátás elején, különösen stabil Pasquill-kategóriáknál igen jelentős, de a súlyos balesetekre jellemző néhány órás kibocsátás esetén a bizonytalanság jelentősen csökken, a számított érték bizonytalansági tartománya 0,3–3 szorosa a számított értéknek. A módszer alapul szolgálhat olyan számítógépes program kidolgozásához, amely mind a talajfelszíni szennyezettség dózisteljesítményének, mind ezen érték bizonytalanságának számítására is alkalmas, így objektív alapot ad a szükséges védőintézkedések meghozatalához. A bizonytalansággal megnövelt, konzervatív értékek alapul szolgálhatnak a beavatkozások optimálására.

TOVÁBBI FELADATOK

- A részletes algoritmus kidolgozása.
- Számítógép program kidolgozása tárolt adatbázissal.
- Számítógép program kidolgozása on line adatbázissal.
- Tréning változat kidolgozása tárolt forrástagokkal, való idejű meteorológiai adatokkal.

IRODALOM

- [1] 16/2000. (VI. 8.) EüM rendelet
- [2] Criteria for Use in Preparedness and Response for a Nuclear or Radiological Emergency, GSG-2-Pub 1467, 2011
- [3] Deme Sándor, Pázmándi Tamás, C. Szabó István, Szántó Péter. Az általános környezeti veszélyhelyzet létrejöttét befolyásoló tényezők vizsgálata. Sugárvédelem VII. évf. (2014) 1. szám. 43–56
- [4] Sugárvédelem. Szerkesztette Fehér István és Deme Sándor. Az ELTE Eötvös Kiadó és a Somos Környezetvédelmi Kft. közös kiadása, Budapest, 2010.
- [5] PC COSYMA (Version 2): An Accident Consequence Assessment Package for Use on a PC Report EUR 16239 (1996)
- [6] Martin Drews et al. Measurements of plume geometry and argon-41 radiation field at the BR1 reactor in Mol, Belgium. Report NKS-55 (2002)
- [7] Deme Sándor, Pázmándi Tamás, C. Szabó István, Szántó Péter. A reaktorcsarnoki szellőztetés hatása súlyos atomerőműi balesetnél. Sugárvédelem. VIII. évf. (2015) 1. szám. 1–7.
- [8] R. H. Clarke. A model for short and medium range dispersion of radionuclides released to the atmosphere. Report NRPB-R91 (1979)

A pályamű a SOMOS Alapítvány támogatásával készült.

Mikromérleggel kombinált elektrokémiai radioaktív nyomjelzés technika

Répánszki Réka¹, Kerner Zsolt²
¹Országos Atomenergia Hivatal, ²MTA EK
Repanszki@haea.gov.hu

A kézirat beérkezett: 2016.07.07.

Közlésre elfogadva: 2016.08.08.

Combination of the electrochemical quartz crystal microbalance with radiotracer technique. Quartz crystal microbalance (QCM) is a suitable technique for measuring the modest mass changing on the crystal, but it does not provide any information about the reason of the changing and nothing about the adsorbed ion. It is necessary to combine the QCM with another ion specific method likes the radiotracer technique. Using electrochemistry, the chloride adsorption can be observed which can be verified by \square -spectrometry.

EQCM, ^{36}Cl , cyclic voltammogram, in-situ beta spectrometry

A kvarc kristály mikromérleg alkalmas a kvarccal együtt rezgő tömeg kismértékű megváltozásának detektálására, azonban a mérleg nem ad információt a tömegváltozás okáról, az adszorbeálódott anyag fajtáról. Ezért szükséges a módszert anyag specifikus technikákkal, pl. radioaktív nyomjelzéssel (jelen esetben β -spektroszkópiával) kiegészítve alkalmazni. Elektrokémiai mérések lehetőségét kialakítva, könnyen vizsgálhatóvá válik az adszorbeálódott ^{36}Cl kémiai formája is.

EQCM, ^{36}Cl , ciklikus voltammogram, in-situ β -spektrometria

BEVEZETÉS

Az atomerőművek primerköri szerkezeti anyagain felhalmozódó szennyeződés sugárvédelmi, üzemeltetési és hulladékkezelési szempontból is fontos problémát jelent, mivel a felületen több-kevesebb radioaktív és inaktív anyag megkötődhet. A korróziós termékek a hűtőközeggel a reaktor aktív zónájába kerülve, a neutronsugárzás hatására felaktiválódhatnak, és radioaktív kobalt, nikkelt, vas, mangán és ezüst formájában a szerkezeti anyagokon kirakódhatnak. Üzemzavar esetén, a kazetták, fűtőelemek szivárgása során további szennyeződések fordulhatnak elő, főként hasadási termékek és urán, oldott vagy kolloid formában. Minden erőműben bizonyos üzemidő elteltével, a korróziós-eróziós folyamatok miatt egyes berendezéseket tisztítani, javítani, esetlegesen cserélni kell.

A Paksi Atomerőmű üzemelése során, a 2. blokkon a korróziós folyamatok felgyorsultak, ezek termékei a kör legmelegebb pontján, a reaktorzónában rakódtak ki. 2003 áprilisában, a leállított reaktor tervszerű éves karbantartásának idején a lerakódásokkal szennyezett kazettákat kémiai tisztításnak vetették alá, mely során az utolsó tisztítási sorozatban történt súlyos üzemzavar miatt a teljes primer kör elszennyeződött. Ekkor a tisztítás munkaterületének használt egyes akna, a reaktor és a pihentető medence is azonos hűtőkörön voltak.

Az események után fordult az érdeklődés a hasadási és korróziós termékek lerakódása felé, mely normál üzemmenet, átrakási, rakodási, raktározási folyamatok során is fontos lehet a felületi aktivitás becslése és a személyi sugárvédelem szempontjából [1, 2].

AZ ALKALMAZOTT MÉRÉSTECHNIKA ELMÉLETI HÁTTERE

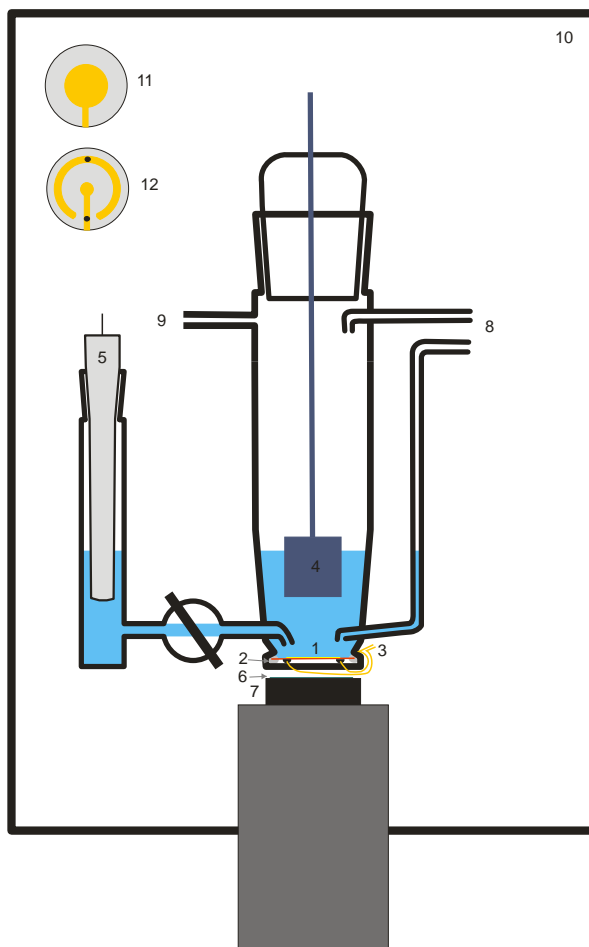
Ismert, sikerrel alkalmazott technika az in-situ elektrokémiai nyomjelzés. Ennek legegyszerűbb változatában a minta egy vékony fólia, melynek egyik oldalát a vizsgált fémrel vonják be, ami elektródként is funkcionál [3]. Az oldat egy vagy több komponense radioaktív, tipikusan β - vagy α -sugárzó. A fólia alatt elhelyezett detektor segítségével mérhető a fémrétegen lévő (adszorbeált, levált stb.) aktív anyag mennyisége. Az oldat sugárzása adja a háttérrel, mely jó esetben kisebb aktivitású a vizsgált mintához képest, illetve kisebb intenzitást ad a detektorra, mint a jó hatásfokkal mérhető adszorptívum. A módszerrel lehetőség van az adszorpció tanulmányozására 10^{-6} - 10^{-4} mol/dm³ koncentráció-tartományban, <1% felület borítottság mellett. Ezekre a koncentrációkra más mérésekből csak extrapolációval lehet következtetni.

A mérőrendszer

Olyan mérőcellát építettünk (1. ábra), amelyben fólia helyett egy vékony kvarckristály van, így az aktivitásmérés mellett tömegváltozás mérésére is lehetőség van. Az alul nyitott üvegedénybe rugalmas szilikongumi ragasztóval rögzítettük a kvarc kristály lapkát. A kristály hátoldalán (alsó oldalán) található párolt arany kontaktushoz szénpasztával 0,05 mm átmérőjű arany huzalokat rögzítettünk, és ezzel a kristályt az oszcillátorhoz csatlakoztattuk. A detektort a kristály alatt kb. 5 mm-re helyeztük el. A fotoelektron-sokszorozó ablakára szilikonolajjal rögzítettük a szcintillátor lapkát. A cellát fénymentesen záró, földelt Faraday-kalitkában helyeztük el. Mérés előtt az oldatot 99,996% tisztaságú argon gáz átbuborékolásával oxigénmentesítettük, mérés közben pedig argont áramoltattunk az oldat fölött. Az elektrokémiai méréshez hagyományos háromelektrodos elrendezést alakítottunk ki. A munkaelektrodunk a kvarcra párologtatott aranyréteg. (Ehhez az oszcillátoron keresztül csatlakoztunk.) A referenciaelektrodot – egy telített kalomel elektrodot – egy üvegcsappal elválasztott külön térrészben helyeztük el, hogy az elektródból esetleg szivárgó kálium-klorid ne szennyezhesse az oldatot. A referenciaelektrodot egy perklórsav oldattal feltöltött Luggin-kapilláris kapcsolta a cellához. Az ellenelektrodként használt kb. 4 cm² felületű platínamezt a cella belsejében, a munkaelektroddal szemben rögzítettük. Előnye, hogy nagy áramok is átvezethetők így a cellán, viszont az ellenelektrodon képződő termékek (pl. oxigén) szennyezik az oldatot. Továbbá a kvarckristály és az ellenelektrod között fellépő kapacitív csatolás elhangolja a rezgőkört. Ezért a platínamezt a demonstrációs kísérletek során egy platinahuzalra cseréltük.

A mérőrendszer az alábbi eszközöket tartalmazza:

- Stanford Research Systems STM25 típusú – frekvenciaszámlálót, oszcillátort és 1,3 cm² felületen, 100 nm aranyréteggel ellátott, 2,5 cm átmérőjű AT vágású kvarckristály lapkát tartalmazó – EQCM mérőberendezés
- NDI 65/25 szcintillációs mérőfej 20 mm átmérőjű, 0,5 mm vastag béta-plasztik szcintillátorral (Gamma Műszaki Zrt.)
- EF453 potenciosztát (Elektroflex kft., Szeged)
- házi készítésű üvegcella



1. ábra: A kombinált elektrokémiai mikromérleges-nyomjelzéses mérőcella vázlata. 1/ rezgő kvarclap arany réteggel, 2/ rugalmas ragasztás, 3/ 0,05 mm átmérőjű arany vezetékek, 4/ platina lemez ellenelektrod, 5/ telített kalomel referenciaelektrod, 6/ plastik szcintillátor, 7/ fotoelektron sokszorozó, 8/ gázbevezetések, 9/ gázkivezetés, 10/ fényszigetelt Faraday-kalitka, 11/ kvarclap felső oldala (munkaelektrod), 12/ kvarclap alsó oldala (rezgőkör hozzávetései)

A vizsgált β -sugárzó ionok

A fontosabb, mérhető tiszta β -sugárzó nuklidok tulajdonságait (felezési idő, maximális β -energia) az 1. táblázat foglalja össze. Meghatároztuk, hogy a minta oldattal érintkező felületéről a detektor felé haladó elektronok hány százaléka jut át a 0,025 cm vastagságú kvarcon és a 0,5 cm vastagságú levegőrétegen (I/I_0) a következő, béta-sugárzásra még monoenergiás esetben is csak közelítőleg érvényes az alábbi összefüggés segítségével:

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(-0,693 \frac{\sum x_i \rho_i}{d_{1/2}}\right)$$

ahol $d_{1/2}$ az adott energiájú sugárzásra jellemző, felületi sűrűség dimenzióban [$\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$] kifejezett felezési rétegvastagság, x_i az egyes rétegek vastagsága [cm], ρ_i a sűrűsége [$\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$].

1. táblázat. Néhány fontosabb, gamma sugárzás nélküli β -bomló nuklid jellemző nukleáris adatai (* természetes radioaktív izotóp)

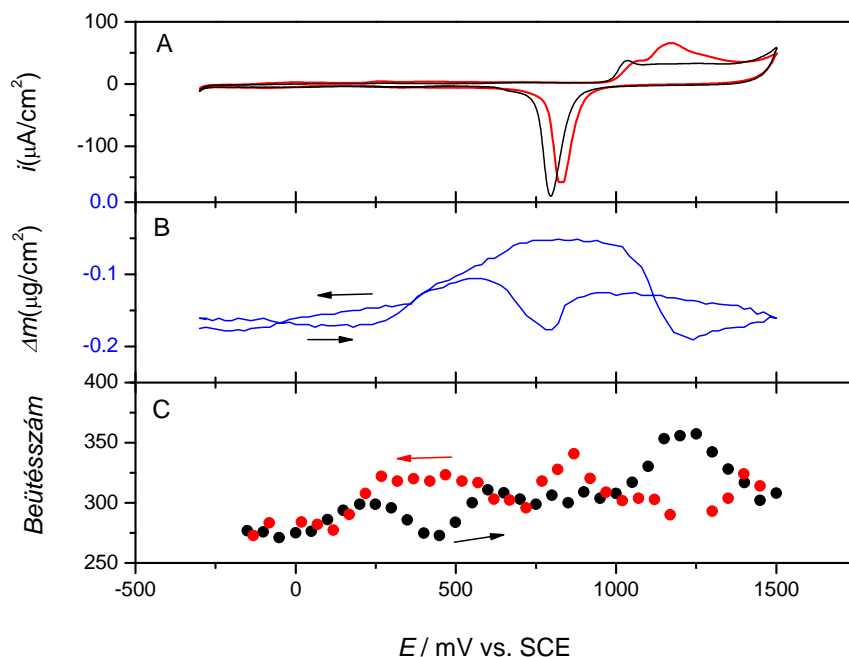
Nuklid	$t_{1/2}$	$E_{\beta, max}$ [MeV]	Tömegabszorpciós együttható μ , [cm ² g ⁻¹]	Felezési rétegvastagság $d_{1/2}$, [g cm ⁻²]	I/I_0 , [%]
¹⁴ C*	5730 év	0,155 (β^- 100%)	261	0,0025	< 0,0001
³² P	14,3 nap	1,718 (β^- 100%)	10,8	0,064	48,5
³⁵ S	87,4 nap	0,167 (β^- 100%)	243	0,0028	< 0,0001
³⁶ Cl	$3,1 \cdot 10^5$ év	0,714 (β^- 98,3%)	34,4	0,020	9,88
⁴⁵ Ca	165 nap	0,254 (β^- 100%)	128	0,0051	< 0,0001
⁹⁰ Sr	28 év	0,54 (β^- 100%)	49,9	0,0139	3,52
⁹⁰ Y	64,2 óra	2,25 (β^- 100%)	7,5	0,093	60,6
²⁰⁴ Tl	3,8 év	0,765 (β^- 98%)	31,4	0,022	12,2

Látható, hogy a 0,5 MeV-nél kisebb energiájú sugárzás gyakorlatilag teljesen elnyelődik a kvarcon, így az ilyen nuklidok nem mérhetőek ebben az elrendezésben. Jól mérhető viszont a ³⁶Cl, a ³²P, ⁹⁰Y, a ²⁰⁴Tl és mérhető még a ⁹⁰Sr is, bár felezési rétegvastagsága miatt leányeleme, az ⁹⁰Y is megjelenik a mérésben.

A MÉRŐRENDSZER TESZTELÉSE

A kombinált elektrokémiai - nyomjelzéses mikromérleges mérési eljárást egy jól ismert, jelentős irodalommal rendelkező elektrokémiai rendszerrel vizsgáltuk, kloridionok adszorpcióját vizsgáltuk arany felületen perklórsav oldatból [4]. 0,1 mol / dm³ perklórsav oldathoz Na³⁶Cl-t adtunk 0,1 mmol/dm³ koncentrációban és mértük a beütésszámot valamint a rezgési frekvenciát az aranyelektród potenciáljának függvényében.

A három részből (A, B, C) álló 2. ábrán megfigyelhető, hogy klorid-ionok jelenlétében megváltozik a voltammogram alakja, az arany oxidációs tartományában megnő az áram, és eltolódik az arany redukciós csúcsa katódos irányban. A B ábrán látható, hogy anódos potenciálváltoztatás közben nő az adszorbeált tömeg, majd az oxidációs tartományban csökken. Az arany oxidációja közben ismét enyhe tömegnövekedés tapasztalható. Katódos irányban az arany redukciójakor az adszorbeált anyag ismét elhagyja a felületet, majd az átalakult felületen újból megkötődik. 500 mV-nál lassan a kiindulási értékre csökken a tömeg.



2. ábra: Adszorpciós kísérlet aranyelektrodon. A: ciklikus voltammogram 1mV/s sebességgel mérve perklórsav-oldatban (—) és klorid-ionok jelenlétében (---). B: az adszorbeált tömeg változása (EQCM). C: az adszorbeált klorid mennyiségének változása (beütésszám), anódos (•) és katódos (•) irányú potenciálváltoztatás közben.

A potenciálváltoztatás sebessége 1 mV/s, mintavételezési idő 48 s. A béta intenzitás mérése (C ábra) alapján megállapítható, hogy anódos irányban fokozatos $^{36}\text{Cl}^-$ adszorpciója történik, de 400 mV körül megjelenik egy minimum. Az arany oxidációs tartományában megjelenő áramcsúcs után a felületen lévő klorid mennyisége csökken. Katódos irányban az aranyoxidáció tartományát elhagyva nő, majd az arany redukójakor csökken a felületen jelenlévő klorid mennyisége. Látható, hogy a tömeg és a beütésszám görbék lefutása különböző. Az arany oxidációjának kezdetekor erős tömegcsökkenés figyelhető meg, de a megkötődött klorid mennyisége egyértelműen növekszik. Ennek egy lehetséges magyarázata, hogy ekkor a nagyobb tömegű perklorát-ionok kisebb klorid-ionokra cserélődnek. A bemutatott mérés demonstrálja, hogy az eljárás alkalmas az adszorpciós folyamatok részletes tanulmányozására. ^{36}Cl nyomjelzéssel vizsgálható a klorid-ionok szerkezeti anyagok (acélok, cirkónium ötvözetek) felületén bekövetkező adszorpciója, ami erőművi körülmények között fontos kérdés, ugyanis a felületen megkötődő klorid-ionok elősegíthetik az ausztenites acélok feszültségkorrózióját. Esetleg szélsőséges esetekben a cirkónium-ötvözetek lokális korróziójához is vezethetnek, valamit az adszorpciós folyamatoknak szerepük lehet a reaktor indítása során a primer köri hőhordozóban mérhető klorid-koncentráció maximum kialakulásában. Az adott kísérleti elrendezésben mérhető még egyéb β -sugárzó izotóp is, mint például ^{32}P , ^{90}Y , ^{204}Tl és ^{90}Sr .

KONKLÚZIÓ

Munkánk célja az volt, hogy alkalmas mérőrendszert építsünk a β -sugárzó izotópok, főleg a ^{36}Cl ionok számára ahol az adszorbeálódott tömeg mérése és az elektrokémiai vizsgálatok mellett az akkumulálódott ion is azonosíthatóvá válik. A mérőrendszer alkalmasságát egy irodalmilag jól definiált példával demonstráltuk. Továbbiakban a kloridion adszorpciót a

kvarcra felvitt különböző primerkörü szerkezeti anyagokon is vizsgálni lehet, ezzel plusz információt szolgáltatva a korróziós folyamatok leírásához.

Azonban a berendezést további β -sugárzó izotópok mérésére is alkalmassá lehet tenni egy másik AT metszésű 10MHz-es kvarc lapka használatával, mely a jelenlegi 0,025 cm vastagság helyett a harmada, 0,008 cm lenne, így a 0,5 MeV-nél kisebb energiájú sugárzások is átjutnának a kvarc rétegen, és ezzel mérhetőkké válnának. Mivel elsődleges cél a szennyező ionok, főleg a korróziós, és hasadási termékek adszorpciójának vizsgálata lenne, gondolva itt a γ -sugárzó izotópokra, ezekhez azonban további, de nagyobb volumenű átalakítást igényelne a mérőegység. A nagyenergiájú foton-sugárzó izotópok mérés technikailag más módszert követelnének meg, az ólomárnyékolás és egy gamma-detektor beépítése is változtatna a mérések jelenlegi kivitelezésén, a kiértékelés során pedig a hatásfok gyengülése okozna megoldandó problémát.

IRODALOM

- [1] R. Répánszki, Zs. Kerner, G. Nagy: Adsorption (2007) 13 pp201-207
- [2] R. Répánszki, Zs. Kerner: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry (2011) vol. 288 Issue 3. pp729-733
- [3] K. Varga, E. Maleczki, E. Házi, G. Horányi: Electrochimica Acta (1990) 35 p817
- [4] R. Buják, K. Varga: Electrochimica Acta (2006) 52 pp332-341

A pályamű a SOMOS Alapítvány támogatásával készült.

Nagy gamma-dózisteljesítmény mellett történő felületi szennyezettség mérése intelligens detektorokkal

Petrányi János
Gamma Zrt. 1097 Budapest Illatos út 9.
gamma@gammatech.hu

A kézirat beérkezett: 2016.07.08.

Közlésre elfogadva: 2016.09.06.

Surface contamination measurement at high gamma background with intelligent detectors

In order to carry out surface contamination measurement at high gamma dose-rate two measuring instruments, one gamma background radiation meter and one surface contamination meter, are needed. An algorithm realized in an intelligent microcomputer compensates the beta and gamma radiation level measured by surface contamination meter with gamma radiation level measured by gamma background radiation meter to have online beta surface contamination values. The BNS-298 instrument was designed to measure the radioactive contamination of the spent fuel pool at Paks Nuclear Power Plant, which was contaminated during an incident in 2003. Experimental measurements were carried out in the air ventilation system of Institute of Isotopes Ltd. in order to study whether radioactive contamination is detectable in the pipelines at highly fluctuating gamma background.

High gamma dose-rate, surface contamination measurement

Felületi szennyezettség méréshez magas gamma-dózisteljesítmény mellett két műszerre van szükség: egy gamma-háttérsugárzás mérőre, valamint egy béta-felületi szennyezettség mérőre. Egy intelligens mikroszámítógépen megvalósított algoritmus a béta-felületi szennyezettség mérő által mért béta és gamma-sugárzás értékét kompenzálja a gamma-dózisteljesítmény mérő által mért gamma-sugárzás értékével, on-line meghatározva a béta-felületi szennyezettséget. A 2003-as paksi üzemzavar során elszennyeződött pihentető medence szennyezettségének mérésére született meg a BNS-298 műszer, amely rendelkezik egy összegzett béta-gamma, és egy gamma-dózisteljesítmény távadóval. Kísérleti mérések zajlottak le az Izotóp Intézet Kft. légtechnikai rendszerében, annak érdekében, hogy egy erősen ingadozó gamma-háttér mellett a csővezetékekben elhaladó radioaktív szennyeződések kimutathatóak-e.

Magas gamma-dózisteljesítmény, felületi szennyezettség mérés

BEVEZETÉS

Személyek és tárgyak közvetlen, gyors felületi szennyezettség mérésére a legtöbb esetben kézi műszereket használnak. A műszerekbe leggyakrabban nagyfelületű végablakos Geiger-Müller számlálót (egyet vagy többet) béta-számlálásra vagy ZnS(Ag) szcintillátort alfa-mérésre építenek be. Ezekkel a detektorokkal lehetővé válik tárgyak vagy személyek felületi szennyezettségének gyors és hatékony mérése [1–4]. Felületi szennyezettség mérésének megkezdése előtt háttérmérést szokás végrehajtani tiszta térben, hogy a gamma-háttérsugárzás ne befolyásolja a mérést. Ezzel az eljárással az a probléma, hogy a mérés közben a gamma-háttérsugárzás nem feltétlenül állandó, különösen akkor változhat, ha például egy nukleáris baleset következtében a gamma-háttérsugárzás megemelkedik vagy egyszerűen a mérés környezetében forrásokat mozgatnak, kezelnek. Az ilyen emelkedett gamma-dózisteljesítmény mellett történő gyors és pontos felületi szennyezettség mérése mindig is kihívások elé

állította a szakembereket. Ennek a mérési feladatnak az elvégzéséhez két műszer együttes alkalmazása a legcélravezetőbb: egy gamma-dózisteljesítmény távadó, valamint egy béta- és gamma-detektor [5–7]. A gamma-dózisteljesítmény távadó által folyamatosan mért levegőben elnyelt gamma-dózisteljesítménnyel kompenzálni lehet a béta- és gamma-detektor által regisztrált összegzett béta- és gamma-sugárzás ^{137}Cs ekvivalens dózisteljesítményt, végeredményül a béta-felületi szennyezettséget meghatározva.

MŰKÖDÉSI ELV

A két-detektoros mérési összeállításban a két detektor önállóan mér, de van egy központi intelligens egység, amely a független mérési eredményekből meghatározza a béta-felületi szennyezettséget. A központi intelligens egységbe a következő képlet alapján valós időben, vagy utólagos kiértékeléssel lehet kalkulálni a béta-felületi szennyezettséget és a statisztikus hibát:

$$D_b = (D_2 - D_1 \cdot K_f) \cdot H_b \quad (1)$$

ahol:

- D_b : Béta-felületi szennyezettség [Bq/cm^2]
- D_2 : A béta- és gamma-detektor által regisztrált összegzett béta- és gamma-sugárzás ^{137}Cs ekvivalens dózisteljesítménye [Gy/h]
- D_1 : A gamma dózisteljesítmény távadó által mért levegőben elnyelt dózisteljesítmény [Gy/h]
- K_f : A gamma-dózisteljesítmény távadó és a béta- és gamma-detektor együttfutását korrigáló faktor
- H_b : A béta- és gamma-detektor háttér kompenzált dózisteljesítményének béta-hatásfok faktora (külön faktorok ^{90}Sr , ^{204}Tl , ^{14}C méréshez) [$\text{Bq}\cdot\text{h}/\text{cm}\cdot\text{Gy}$]

$$h_b = H_b \cdot \sqrt{D_2^2 \cdot h_2^2 + D_1^2 \cdot K_f^2 \cdot h_1^2} / D_b \quad (2)$$

- h_b : A béta-felületi szennyezettség statisztikus hibája
- h_1 : D_1 2σ becslült statisztikus hibája
- h_2 : D_2 2σ becslült statisztikus hibája

DETEKTOROK

A méréshez alkalmazott gamma-dózisteljesítmény távadó jellemzői:

Mérési tartománya:	50 nGy/h–0,5 Gy/h.
Indikálási tartomány:	30 nGy/h–10 Gy/h.
Energiatartomány:	50 keV–1,5 MeV
Relatív alaphiba:	max. $\pm 15\%$
Statisztikus ingadozás:	max. $\pm 10\%$
Túlterhelhetőség:	100 Gy/h-ig
Energia-függés (Cs-137 viszonyítva):	$\pm 25\%$
Hőmérséklet-függés:	$\pm 2\%$
Tápfeszültség-függés:	kisebb, mint $\pm 5\%$,

A méréshez alkalmazott béta- és gamma-detektor jellemzői:

Mérési tartomány:	0,2 Bq/cm^2 –500 kBq/cm^2
Mérési bizonytalanság:	$\pm 30\%$

Statistikus ingadozás: max. $\pm 20\%$
Küszöbenergia: 50 keV.

Az alkalmazott detektorok Geiger–Müller csővel szereltek, széles méréstartományban működni képesek. A széles mérési tartomány a Geiger–Müller cső anódjainak átkapcsolásával, valamint időosztásos táplálásával valósul meg.

A legérzékenyebb méréstartományban a Geiger–Müller cső mind a tíz anódjára jut nagyfeszültség. Nagyobb beütésszámok esetén a detektor képes automatikusan kilenc anódra jutó nagyfeszültséget a felére csökkenteni, hogy csak egy anód maradjon bekapcsolva.

A beérkező impulzus hatására a detektorban a felére csökkenti az anódfeszültséget egy rövid időtartamra, amíg a Geiger–Müller cső gázterében a tértöltés megszűnik. Ez a működési elv széles méréstartományt és hosszabb élettartamot eredményez [15].

MÉRÉS

A műszer első használata előtt, valamint évente kalibrációt érdemes végrehajtani. A mindennapos használat előtt elégséges a két detektort egymás mellé tenni és egy háttérlevonás mérést elindítani.

A műszer kalibrálása során először a két detektort külön–külön kell kalibrálni. A béta- és gamma-detektorra egy gumi sapkát kell helyezni, a béta-sugárzás kiszűrésére. Első lépésben a beütésszámból dózisteljesítmény kalkulálásához szükséges gamma-dózisteljesítmény faktorokat kell meghatározni. 10 anódos üzemmódban, kis gamma-dózisteljesítményű ^{137}Cs térben, majd 1 anódos üzemmódban, nagy gamma-dózisteljesítményű ^{137}Cs térben kell a méréseket elvégezni, korrigálni a faktorokat, hogy hibahatáron belül legyen a mért eredmény. A holtidő faktor meghatározásához 1 anódos üzemmódban nagy gamma-dózisteljesítményű ^{137}Cs térben kell méréseket végrehajtani. Az energiafüggés beállítása ^{241}Am etalon segítségével történik, de ezt a beállítást csak a gamma-dózisteljesítmény távadón kell végrehajtani, mivel csak azon lehet az energiaszűrőn állítani. Az etalonokkal végrehajtott méréseket követően alacsony háttérű mérőhelyen a háttérlevonás beállítása szükséges.

A béta- és gamma-detektor felületi szennyezettség kalibrálásához ^{90}Sr , ^{204}Tl , ^{14}C etalonokkal kell méréseket végrehajtani. A felületi szennyezettség mérések előtt a béta- és gamma-detektor gumi sapkáját el kell távolítani. A különböző energiájú béta-etalonokhoz, különböző béta-hatásfok faktorokat kell meghatározni. A későbbi használat során a mérés előtt ki kell választani, hogy mely nuklid energiájához tartozó hatásfok faktor kerüljön felhasználásra. A széles méréstartományban történő méréshez 1 és 10 anódos üzemmódban is szükséges a hatásfok faktorok meghatározása.

Mivel a műszerek széles hőmérséklet tartományban működnek, ezért minden darabos klimatikai vizsgálaton esnek át, amelynek során a műszer által mért háttérsugárzás a szobahőmérsékleten mérthez képest $\pm 30\text{nGy/h}$ -nál jobban nem térhet el a -25°C – $+55^\circ\text{C}$ hőmérséklet tartományban.

A műszereknek terepi használatukból adódóan rázásállónak kell lenniük, ezért minden darab szerelési rázáson esik át, amely 15 perces 2 g-s rázást jelent, melyet követően gamma- és béta-forrás mérésével történik a működés visszaellenőrzése.

Az algoritmus és a műszer működésének ellenőrzésére a következő mérési sorozatok kerültek végrehajtásra. A méréshez a két detektort a központi intelligens egységre kell kapcsolni. A központi egység meghatározza a fent ismertetett képlet alapján a béta-felületi szennyezettséget. Ismert, kb. 10 kBq/cm^2 ^{90}Sr , ^{204}Tl , ^{14}C felületi minták mérése történik, először normál, majd magas, $>20\text{ mGy/h}$ gamma-háttérsugárzás mellett. A mérések sikeresnek tekinthetők, ha a magas gamma-háttér mellett mért felületi szennyezettségek maximum 30 %-ban tértek el a normál háttér mellett mért felületi szennyezettségektől.

FELÜLETI BÉTA-SZENNYEZETTSÉG-TÁVADÓ

Az előző pontokban ismertetett algoritmus, különböző alkalmazásokban is használható, ezek bemutatása következik gyakorlati példákon keresztül.

Az algoritmus egyik alkalmazása, amikor olyan helyen van szükség felületi szennyezettség mérésére, ahol több nagy aktivitású gamma-forrás is befolyásolhatja a mérést, például egy nukleáris létesítményben olyan részegységek, berendezések ellenőrzésekor, amelyeket nem lehet elvinni az aktív zónából. Amennyiben ilyen berendezés felületén dekontaminálást hajtanak végre, ennek a folyamatnak a hatékonyság ellenőrzésére kiválóan alkalmazható ez a megoldás. Akkor válik igazán szükségessé a közvetlen mérési módszer használata, amikor nincs mód vagy idő a felületről mintavételezést végrehajtani, majd inaktív környezetben a mintát mérni és kiértékelni vagy egyszerűen túl nagy az ellenőrzendő terület, és reprezentatív mintavétel nem elégséges/lehetséges. Az eljárás általam ismert első gyakorlati alkalmazása a 2003-as paksi üzemzavar során elszennyeződött pihentető medence szennyezettségének mérése volt (1. ábra), [8–13]. Az elkészített speciális felületi béta-szennyezettség-távadó erre a célra lett kifejlesztve. A BNS-298 műszer rendelkezett egy összegzett béta-gamma és egy gamma-dózisteljesítmény távadóval. Mindkét távadóban ugyanolyan végablakos nagy felületű és nagy térfogatú Geiger-Müller cső foglalt helyet. A gamma-detektor előtt alumínium lemez árnyékolta a béta-sugárzást, míg a béta- és gamma-detektor végablakát 0.9 mg/cm² felületi sűrűségű fólia választotta el a külvilágtól. ¹³⁷Cs gamma-sugárzására 1 %-on belül azonos értékre lettek kalibrálva a távadók. A két intelligens távadó külön-külön végezte a mérést, majd a béta-felületi szennyezettség számítógépes adatfeldolgozás segítségével került meghatározásra.



1. ábra. Mérés a paksi pihentető medencénél

A méréseket RS-485-ös kommunikációs vonalon keresztül számítógépes program vezérelte. A PC-s program 2 másodpercenként lekérdezte a detektoroktól a mérés eredményét és pontosságát. A mérés előtt háttérmérést kellett végrehajtani. A béta-detektorra gumiszűrőt helyezve, a béta-sugárzással szemben érzéketlenné vált a detektor. A háttérmérés során a két detektorral mért gamma-dózisteljesítmény különbségét nullázta a program, a kívánt kimutatási határ egynegyedénél kisebb statisztikus hiba mellett. A háttérmérés után a béta-szűrőt levéve indulhatott a szennyezettség mérés. A gyűjtött adatokból a program folyamatosan számolta a béta-szennyezettséget. A mérés addig tartott, amíg a pontosság és a kimutatási határ le nem csökkent az előírt érték alá vagy a mérési idő el nem érte a maximumát. Ez célszerűen azonos volt a háttérmérés idejével. A mérés a lehető legrövidebb, automatikusan változó ideig tartott.

A távadók közös mérés indítását követően a távadók 2 másodpercenként számították a ^{137}Cs ekvivalens dózisteljesítmény értékeket, a mérés statisztikus hibáját és a mérés idejét. Adatküldés a számítógép felől kezdeményezett, „master-slave” típusú kommunikáció volt, ez biztosította az azonos mérési ciklusokat mindkét távadó esetében és tette lehetővé, hogy a két távadó egy RS-485 buszra legyenek kötve. A mérés során nem történt sem adatvesztés, sem adatsomag ütközés. A számítógép 2 másodpercenként lekérdezte az adatokat, elvégezte a háttérlevonást és számította annak statisztikus hibáját.

A paksi pihentető medencében több mérés is sikeresen lezajlott. A mérési eredmények segítették a rekonstrukciós munkák végrehajtását.

GYALOGOS SUGÁRFELDERÍTÉS

A Pakson használt felületi béta-szennyezettség-távadó (BNS-298) kiválóan vizsgázott ipari környezetben, azonban kialakítása miatt (2 detektor + PC) nem tette lehetővé, hogy kézi műszerként is bevethető legyen (2. ábra). A nukleárisbaleset-elhárítás egy igen lényeges eleme a gyalogos sugárfelderítés, azon belül is egy útszakasz szennyezettségének feltérképezése vagy szennyezett terület határainak meghatározása. Erre a felderítési feladatra létezik egy módszer, amely a következő lépésekből áll. Az első gyalogos felderítő adott pontonként gamma-dózisteljesítmény mérővel 1 méter magasságban megméri a gamma-háttérsugárzást. A második felderítő az első mögött haladva a felszínhez (földhöz, tereptárgyhoz) minél közelebb tartva (sok esetben békaügetésben) béta+gamma-detektorral mér. A mérési eredményeket az idő, hely koordinátákkal együtt egy papírra rögzítik, majd kiszámolják a felületi szennyezettség mértékét.



2. ábra. gyalogos sugárfelderítés

A fent leírt módszer egyszerűsítésére született meg egy speciális műszer (IH-295), ami a korábban ismertetett kétdetektoros (BNS-298) távadó kézi változata lett.[14, 15] A pontos működés tekintetében az algoritmus nem sokat változott, de a PC feladatát egy beágyazott mikrokontroller vette át, így kis helyen alacsony fogyasztás mellett lehetett ugyanazt az eredményt kapni. Az eszköz kapott egy gyors keresési funkciót is, ami lehetővé tette, hogy a számítás eredménye nem csak a mérés végén, hanem mérés közben is 2 másodpercenként láthatóvá váljon. Az IH-295-ben alkalmazott eljárás eredményeként a műszer kijelzése keresés üzemmódban kisebb statisztikus ingadozású, mint a hagyományos műszereké, ugyanakkor gyorsan reagál és riasztást generál. Ez alkalmassá teszi a műszert pontszerű

sugárforrás gyors felderítésére mind a gamma-dózisteljesítmény, mind béta-felületi szennyezettség szempontjából.

A 2005-ben megalkotott kétdetektoros (BNS-298) távadó hordozható változatainak kifejlesztése pár évvel később kezdődött meg. Két műszer is elkészült, az IH-295 és a BNS-295. Az IH-295 két azonos Geiger–Müller csövet használt és a béta- és gamma-detektor része egy hosszú szonda nyél végén foglalt helyet, addig a BNS-295 egy kézi markolatos, 4 db Geiger–Müller csőből felépített felületi szennyezettség mérőből áll. Ezeknél az eszközöknél már számítógép használata nélkül, a műszer saját elektronikájának segítségével történt a mért adatok kiértékelése, a gamma-háttérrel korrigált felületi szennyezettség számítása. [14–16] A felhasználó már felderítés közben láthatta az aktuális béta-felületi szennyezettség és gamma-háttér adatokat.

Az IH-295 és BNS-295 műszerek tekintetében a hagyományostól eltérő keresési algoritmus került alkalmazásra. A természetes háttér közelében igen nagy ingadozás jellemző. Hagyományos műszerekben általában úgy valósítják meg az IEC 61017 szabványban szereplő statisztikus ingadozásra előírtakat, hogy alacsonyabb szinteknél az utolsó pillanatértékekből annyinak képezik az átlagát, amennyi szükséges a megengedett statisztikus ingadozáshoz. Ez sugárzás növekedése esetén gyors beállást eredményez, de a sugárzás csökkenésekor megnöveli a visszaállási időt. Ez a gyakorlatban azt jelenti, hogy pl.: $6 \mu\text{Gy/h}$ levegőben elnyelt gamma dózisteljesítmény hirtelen lecsökkenése a normál háttér (80 nSv/h) közelére megközelítőleg 128 pillanatérték átlaga után fog pontos eredményt adni, így a visszaállási idő akár elérheti a négy percet is. Ez alkalmazói szemmel nézve nem elfogadható. Az IH-295 és a BNS-295 műszerekben módosított keresés üzemmód lett megvalósítva. A műszer mindaddig képezi a pontos átlagértéket, amíg szignifikáns változás nem következik be, ekkor 3 ciklus idejére pillanatértéket ad ki, majd előlről kezdi az átlagolást. Ez lényegesen gyorsítja a visszaállást és segíti az alkalmazót a keresésben.

Az eljárás eredményeként a műszer kijelzése keresés üzemmódban kisebb statisztikus ingadozású, ugyanakkor gyorsan reagál, szintátlépés esetén riasztást generál. Ez alkalmassá teszi a műszert gyors felderítésre mind a gamma-dózisteljesítmény, mind a béta-felületi szennyezettség szempontjából.

A műszerekkel egyébként alfa-szennyezettség indikálás is lehetséges. Menübeállítások segítségével az összegzett alfa-, béta- gamma-szennyezettség érték cps mértékegységben is kinyerhető háttérlevonás nélkül. Az alfa-sugárzás mértékének meghatározásához a mintát cps üzemmódban meg kell mérni, majd 2 réteg folpack fóliát a detektorra téve az alfa-sugárzás abban elnyelődik, a különbséget a fólia nélküli és a fóliás érték között az alfa szennyezettség okozza.

ÖSSZEFOGLALÁS

Az ismertetett eljárás több más területen is használható. A következőkben pár olyan alkalmazás kerül bemutatásra, ahol az on-line gamma-háttér kompenzálás a béta-mérést elősegíti.

A gamma-kompenzálás nagyon hasonló algoritmus szerint működik az összbeta-mérő rendszerekben, ahol a felületi szennyezettség számítása helyett a minta térfogati béta-aktivitásának a meghatározása a cél. A mérés végrehajtásához 2 intelligens szcintillációs típusú detektor dolgozik együtt, egy alacsony háttérű mérőhelybe integrálva.

Egyik másik alkalmazási területe a változó gamma-háttér mellett történő béta-mérési algoritmusnak a kibocsátás ellenőrzés. Ennek az alkalmazásnak az ismertetése egy következő cikkben várható.

Felületi szennyezettség meghatározását végző algoritmusok több alkalmazásnak is az alapját képezik, ezáltal mind felderítési, mind laboratóriumi analitikai célokra jól használhatóak. A lehetséges alkalmazások köre az itt leírtaknál lényegesen szélesebb, jelen

írás egy kis ízelítőt, betekintést adott a műszerek belső működésébe, illetve további fejlesztési lehetőségeket is magába foglal.

A mérési összeállítás további mérési pontosságot nyerhetne, ha minden mérés előtt etalonnal lehetne kalibrációt végrehajtani, esetleg automatikus mintaváltó segítségével. Tapasztalati mérések alapján az adott helyszíneken elsősorban a gamma-háttérsugárzás ingadozik, ezért jelentős mérési pontosság ettől a megoldástól nem várható, valamint az etalonokon végzett mérések egy év múlva sem tértek el szignifikánsan.

A rendszer méréstechnikailag egyik gyenge pontja, hogy a Geiger–Müller csővel nem lehet eldönteni, hogy az ismeretlen szennyeződésből származó béta-sugárzás energiája mekkora, ezért a felhasználónak előre ki kell választani három nuklid közül, hogy melyhez tartozó határfok faktort használja a műszer, rossz nuklid választás esetén a mérés pontossága jelentősen romlik, ennek a problémának a kiküszöbölése lehet egy fejlesztési irány.

HIVATKOZÁSOK

- [1] Solymosi J, Baumler E, Gresits I, Gujgiczer Á, Németh F, Nagy L Gy, Horváth L, Sarkadi A: Eljárás és kapcsolódási elrendezés radioaktív felületi szennyeződés mérésére. *Lajstromszám*: 201 162.
- [2] Solymosi J, Zagyvai P, Nagy L Gy: Determination of the radioactive bulk and surface concentration by beta detection I. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 209:(1) pp. 3-14. (1996)
- [3] Solymosi J, Zagyvai P, Nagy L Gy: Determination of the radioactive bulk and surface concentration by beta detection II. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 209:(1) pp. 15-26. (1996)
- [4] Solymosi J, Zagyvai P, Nagy L Gy: Determination of the radioactive bulk and surface concentration by beta detection III. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 209:(1) pp. 27-39. (1996)
- [5] Solymosi J, Baumler E, Nagy L Gy, Gresits I, Gujgiczer Á, Sarkadi A, Kőrösi S, Dorogi L, Vodicska M: Eljárás és berendezés béta-sugárzó izotópo(ka)t tartalmazó minta aktivitásának mérésére nagy intenzitású gamma-sugárzási háttérben *Magyar Szabadalom* 200 001 (1990)
- [6] Solymosi J: Nukleáris környezetellenőrző mérőrendszerek: Alkotások leírása 20 p. (1992) *Disszertáció/MTA Doktora*
- [7] Erdős J, Pintér I, Solymosi J: *Magyar ABV védelmi technikai almanach*. Budapest: Zrínyi Miklós Nemzetvédelmi Egyetem, 2003. 285 p.
- [8] Solymosi J, Vincze Á, Bana J: The influence of the April 10, 2003 severe incident on Unit 2 of Paks Nuclear Power Plant on the nuclear safety. *Academic and Applied Research in Military Science* 3:(5) pp. 767-776. (2004)
- [9] Horváth K, Rónaky J, Solymosi J: Determination of the root cause of the serious incident at Paks NPP on 10 April 2003. *Academic and Applied Research in Military Science* 4:(3) pp. 481-496. (2005)
- [10] Bujtás T, Nényei Á, Solymosi J: Raditation protection aspects of the accident recovery. *Academic and Applied Research in Military Science* 5:(4) pp. 557-568. (2006)
- [11] Bujtás T, Solymosi J.: Kiegészítő sugárvédelmi ellenőrző rendszer tervezése és létesítése a paksi atomerőmű 2. blokki 1. számú aknak helyreállításához. *HADMÉRNÖK II*:(1) Paper 2. (2007)
- [12] Vincze Á, Ranga T, Nagy G, Zsille O, Solymosi J: Environmental impact assessment of radioactive water pipe leakage at NPP Paks. *PERIODICA POLYTECHNICA: ELECTRICAL ENGINEERING* 53:(2) pp. 87-91. (2009)
- [13] J Csurgai: Nukleárisbaleset-elhárítás és vegyi katasztrófák összefüggésrendszerének tudományos vizsgálata: doktori (PhD) értekezés, Doktori (PhD) értekezés, ZMNE 2003.

- [14] Solymosi J, Baumler E, Nagy L Gy, Zagyvai P, Gresits I, Gujgiczer Á, Dorogi L, Takács M, Vajda N, Vodicska M.: Eljárás és berendezés ismeretlen összetételű és/vagy több komponensű, főként hasadási termékekkel kontaminált terepszakaszok sugárszintjének földi felderítésére. Lajstromszám: 198 798.
- [15] Baumler Ede, Németh Ferenc, Erdős Kálmán, Sarkadi András, Gujgiczer Árpád, Illés Zsolt, Nagy László, Pintér István, Solymosi József, Plachtovics György, Szabó Endre: Univerzális radioaktív sugármérő műszer és eljárás, valamint rendszertechnikai elrendezés a méréshatárának kiterjesztésére. Lajstromszám: 224 502
- [16] J Solymosi, E Bäumlér, A Sarkadi, Á Gujgiczer, I Pintér, Á Vincze: Wide range universal radiation measuring instrument Academic and Applied Research in Military Science 1:(1) pp. 133-144. (2002)

A pályamű a SOMOS Alapítvány támogatásával készült.

Gamma-spektrometriai módszer magyarországi salakminták ^{226}Ra aktivitáskoncentrációinak meghatározására a 186 keV-os csúcs használatával

Völgyesi Péter^{1,3*}, Szabó Zsuzsanna², Salupeto-Dembo Judith³, Kis Zoltán¹, Szabó Csaba³

¹MTA Energiatudományi Kutatóközpont, 1121, Budapest, Konkoly-Thege Miklós út. 29-33

²Magyar Földtani és Geofizikai Intézet, 1143, Budapest, XIV., Stefánia út 14

³ELTE TTK, 1117, Budapest, Pázmány Péter sétány 1/c

*petervolgyesi11@gmail.com

A kézirat beérkezett: 2016.07.06.

Közlésre elfogadva: 2016.10.04.

Using the 186-keV peak for ^{226}Ra activity concentration determination in Hungarian coal-slag samples by gamma-ray spectrometry - The uranium isotopic abundance and the ^{238}U - ^{226}Ra secular equilibrium were studied in nine Hungarian coal slag samples by using a low-background counting chamber and the related gamma-spectrometric measurement system. The ^{226}Ra activity concentration was measured based on the radon decay products and also the ^{226}Ra peak at 186 keV. Secular equilibrium existed in eight samples, whereas one sample showed a slight disequilibrium. The direct and fast measurement using only the 186 keV peak was validated which can be used after measuring the uranium isotopic ratio and verifying the ^{238}U - ^{226}Ra secular equilibrium. This method can be used to measure the ^{226}Ra content of high number of samples from the same geochemical background.

Uranium isotopic abundance, ^{238}U - ^{226}Ra secular equilibrium, Building materials, Coal slag

Alacsony háttérű kamrával és a benne lévő gamma-spektrometriai mérőrendszerrel az uránizotóp-arányt és a ^{226}Ra - ^{238}U közti szekuláris egyensúlyt vizsgáltuk 9 erőművi salakmintában. A ^{226}Ra meghatározása a radon leányelemek és a ^{226}Ra 186 keV-os csúcsa segítségével történt. Nyolc mintában fennállt a szekuláris egyensúly, míg egy minta enyhe eltérést mutatott. A módszer lehetővé teszi a rádium gyors és direkt meghatározását a 186 keV-os csúcs segítségével, amely a természetes uránizotóp-arány és a szekuláris egyensúly fennállása esetén megfelelően használható. A módszer alkalmas nagyszámú és hasonló geokémiai háttérrel rendelkező minták rádiumtartalmának (^{226}Ra) meghatározására.

Uránizotóp-arány, ^{238}U - ^{226}Ra szekuláris egyensúly, Építőanyagok, Szén salak

BEVEZETÉS

A környezeti minták mérése, a kis aktivitáskoncentráció értékek miatt, hatékonyabbá tehető alacsony háttérű kamrák alkalmazásával. A mérőrendszer megfelelő beállításával és tesztelésével a környezeti minták számos tulajdonságáról kaphatunk információt [1]. A bennünket érő sugárterhelés egyik lehetséges forrása az építőanyagokban jelenlévő radionuklidok (urán és/vagy tórium sor tagjai, ^{40}K) gamma-sugárzása. Magyarországon a 20. századi ipari tevékenység (pl.: bányászat, kohászat, széntüzelésű erőművek) következtében nagy mennyiségben keletkeztek különböző melléktermékek és szennyező anyagok, amelyekben a technológiai folyamatok során feldúsulhattak toxikus elemek és radioaktív izotópok is. Például a szén elégetése során a kiindulási állapothoz képest jelentősen megnövekedett radioaktív izotópok aránya a keletkezett melléktermékekben (erőművi salak és

pernye) [2]. Magyarországon főként a Dunántúli Középhegységben bányászott szenek urántartalma (és rádiumtartalma is) nagyobb az ország más részeiben bányászottakhoz képest [3]. A második világháború után az erőművi salakot és pernyét nagy mennyiségben használták fel építőanyagokban, építőipari adalékanyagokban és térkitöltő- vagy szigetelőanyagokban. A salakok és pernyék radioaktivitása elsősorban az elégetett szén radioaktív izotóp tartalmától függ, amelyek közül legfontosabb az urán és rádium izotópok jelenléte. Noha a ^{226}Ra meghatározása jelenti a legnagyobb mérés-technikai kihívást, pontos mérése elengedhetetlen, hiszen a ^{226}Ra és leányelemei az ^{238}U -sor leglényegesebb szegmensét képviselik, továbbá a rádium számos építőanyag minősítő indexben is jelen van. A legtöbb kutatásban a ^{226}Ra és ^{238}U közötti szekuláris egyensúlyt csupán feltételezik, de nem támasztják alá mérésekkel. Ehhez hasonlóan a minták uránizotóp gyakoriságát sem vizsgálják. Fontos megjegyezni, hogy az elemek eltérő geokémiai viselkedése [4], a radon (nemesgáz) jelenléte [5] és a különböző antropogén folyamatok (pl. erőművi égetés, [6]) mind befolyásolhatják a szekuláris egyensúly meglétét a teljes bomlási sorban. Éppen ezért az erőművi melléktermékek gamma-spektrometriai vizsgálata különösen érdekes kihívást jelent.

A kutatás célja alacsony háttérű mérőrendszerrel budapesti és ajkai salak minták uránizotóp-arányának (^{235}U - ^{238}U) és a rádium és urán közti szekuláris egyensúly fennállásának vizsgálata, így a 186 keV-os csúcs segítségével történő pontos rádium meghatározás bizonyítása.

MÓDSZEREK

Mérőrendszer

A vizsgálatokhoz az MTA Energiatudományi Kutatóintézet neutronvezető csarnokában lévő alacsony háttérű mérőhelyet használtuk [1]. Az alacsony háttérű kamra falanyaga a II. világháború során felrobbantott Erzsébet híd anyagából származik, így mentes a légköri atomrobbantások szennyezésétől. A kamra árnyékolása 15 cm vas, 5 mm ólom és 1,5 mm nagy tisztaságú vörösréz rétegekből áll össze. Teszteléseink során azt tapasztaltuk, hogy a kamra belsejében a 7-3150 keV-os tartomány beütéseinek száma 152-ed része a kamrán kívülinek. A mintákat egy Canberra GR1319 típusú (13%-os relatív hatásfokú) HPGe detektorral mértük. Az adatgyűjtést Canberra DSA-2000 digitális gamma-spektrométer végezte. A GR1319 HPGe detektort használva a teljes mérési energiatartományra (7-3150 keV) vonatkozó spektrális háttér beütésszáma 1,39 impulzus/s. A detektor energiafelbontása 1,53 keV a 662 keV-os és 1,99 keV az 1332 keV-os csúcsokon. Mivel környezeti mintákról van szó, így a mérési idők 65,5 óra és 360 óra között mozogtak a megfelelő statisztikai pontosság elérése érdekében. A holtidő nem haladta meg egyik mérés esetén sem a 0,05%-ot. A spektrumok kiértékelése Hypermet-PC szoftverrel történt. A környezeti minták alacsony aktivitása miatt a teljes-energiás hatásfok meghatározása közeli, kiterjedt geometriára történt, amit EFFTRAN 1.2 [1, 7, 8] hatásfok transzfer programmal végeztünk. A program ismert, pontszerű és valódi koincideneciától mentesnek tekinthető források hatásfokának méréséből, korábbi Monte Carlo szimulációk eredményeinek felhasználásával határozza meg az aktuálisan érvényes teljes-energia hatásfokot. A radon leányelemek (^{214}Pb és ^{214}Bi) segítségével (a rádium és leányelemei közötti szekuláris egyensúly beállása után, ami ~30 nap) meghatározható a minta rádium aktivitáskoncentrációja. Ehhez radonra zárt mintatartóra van szükség, amit HDPE (nagy sűrűségű polietilén) felhasználásával, saját tervezéssel és gyártással valósítottunk meg. A radonzártságot fluorokarbon elasztomer (Viton) tömítőgyűrű alkalmazásával biztosítottuk. A módszer tesztelésének részletes leírása Kis és munkatársai [1] által publikált cikkben található.

Minták

Összesen 9 salakminta (5 budapesti; 4 ajkai) begyűjtésére került sor különböző lakossági kérésre elvégzett felmérések során. A salak minden esetben térkitöltő anyagként volt jelen a vizsgált régi építésű (>40 év) házakban a parketta alatt vagy a padlásokon. Az ajkai minták a helyi szénbányákból származó szenek elégetéséből származtak, míg a budapesti salakok esetében a forrás legtöbbször nem ismert, hiszen a szenek az ország számos pontjáról érkezhettek a fővárosba. A minták tömege 81 és 127 g között változik, amelyet a szemcseméret különbözősége okoz. A mintákat a mintatartóba helyeztük, majd legalább 24 napra lezártuk, így létrejöhetett a radon és leányelmei közti szekuláris egyensúly. A mintatartókat minden esetben teljesen teletöltöttük a vizsgálandó anyag konstans geometriájának biztosítása és légrés elkerülése érdekében. Az egyszerűség kedvéért az antropogén hatásnak kitett erőművi salakot is a környezeti minták csoportjába soroltuk.

A ^{226}Ra , ^{235}U és ^{238}U meghatározása

A rádium meghatározására két módszer terjedt el. Az egyik esetben a radon (^{222}Rn) leányelemek (^{214}Pb és ^{214}Bi) segítségével mérhető a rádium [9]. Ehhez azonban szükséges 30 napot várni a radon és a rádium közötti szekuláris egyensúly beállításáig, továbbá biztosítani kell az alkalmazott mintatartó radonzártságát és a benne lévő minta homogén eloszlását [5]. Így ez a módszer komplikált minta előkészítést igényel [4].

A másik módszer a rádium közvetlen mérésén alapszik, amely a 186 keV-os csúcs segítségével kivitelezhető [10]. Ebben az esetben nem kell 30 napot várni a lezárástól a mérésig és nem szükséges radonzárt mintatartó alkalmazása sem. Azonban ezen az energián a ^{235}U fel nem bontható spektrális interferenciát okoz a leggyakrabban rendelkezésre álló detektorok esetén. Ahhoz, hogy ezen az energián a rádiumot kellő pontossággal meg lehessen határozni, két feltétel együttes teljesülése szükséges: az ^{235}U és az ^{238}U aktivitás (vagy izotóp) arányának ismerete, valamint a ^{226}Ra és az ^{238}U közti szekuláris egyensúly fennállása.

A minták ^{238}U aktivitásának meghatározása a $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 1001 keV-os vonalának felhasználásával lehetséges. Annak ellenére, hogy ennek a csúcsnak kicsi az intenzitása, kellően alacsony háttérrel alkalmazva – a minta viszonylag nagy urán aktivitáskoncentrációja (>100 Bq/kg) esetén – megbízhatóan használható. Amennyiben ezen az energián mért értékeket a radon leányelemek értékeivel összehasonlítjuk, a szekuláris egyensúly, továbbá a 186 keV-os csúcs alkalmazása is tanulmányozható.

A számolások során a $^{234\text{m}}\text{Pa}$, ^{226}Ra , ^{214}Pb és ^{214}Bi izotópok legerősebb és lehetőleg interferencia mentes vonalait használtuk (1. táblázat). Amennyiben egy másik csúcs által okozott interferencia nem elhanyagolható, úgy azt is figyelembe vettük. A ^{214}Pb és ^{214}Bi vonalai közül csak azokat használtuk, amelyek esetében a számolt aktivitáskoncentráció érték egy szigma standard szóráshoz (1σ) tartozó bizonytalansága $\leq 5\%$.

1. táblázat. A számításokhoz használt gamma-vonalak adatai [11, 12]

Energia (keV)	Nuklid	Gyakoriság (gamma/100 bomlás)	Spektrális interferencia	Bomlási sor (2)	Gyakoriság (gamma/100 bomlás)
186,211	^{226}Ra	3,55		^{235}U	57,2
241,997	^{214}Pb	7,26	nincs ill. elh.		
295,224	^{214}Pb	18,41	^{210}Tl	^{238}U	79
351,932	^{214}Pb	35,60	^{211}Bi	^{235}U	13
609,312	^{214}Bi	45,49	nincs ill. elh.		
665,453	^{214}Bi	1,53	nincs ill. elh.		
768,356	^{214}Bi	4,89	nincs ill. elh.		

Energia (keV)	Nuklid	Gyakoriság (gamma/100 bomlás)	Spektrális interferencia	Bomlási sor (2)	Gyakoriság (gamma/100 bomlás)
806,174	²¹⁴ Bi	1,26	nincs ill. elh.		
934,061	²¹⁴ Bi	3,10	nincs ill. elh.		
1001,026	^{234m} Pa	0,84	nincs ill. elh.		
1120,287	²¹⁴ Bi	14,91	nincs ill. elh.		
1155,19	²¹⁴ Bi	1,64	nincs ill. elh.		
1238,11	²¹⁴ Bi	5,83	nincs ill. elh.		
1280,96	²¹⁴ Bi	1,44	nincs ill. elh.		
1377,669	²¹⁴ Bi	3,97	nincs ill. elh.		
1401,5	²¹⁴ Bi	1,33	nincs ill. elh.		
1407,98	²¹⁴ Bi	2,39	nincs ill. elh.		
1509,228	²¹⁴ Bi	2,13	nincs ill. elh.		
1661,28	²¹⁴ Bi	1,05	nincs ill. elh.		
1729,595	²¹⁴ Bi	2,84	nincs ill. elh.		
1764,494	²¹⁴ Bi	15,31	nincs ill. elh.		
1847,42	²¹⁴ Bi	2,03	nincs ill. elh.		
2118,55	²¹⁴ Bi	1,16	nincs ill. elh.		
2204,21	²¹⁴ Bi	4,91	nincs ill. elh.		
2447,86	²¹⁴ Bi	1,55	nincs ill. elh.		

elh.: elhanyagolható

EREDMÉNYEK ÉS DISZKUSSZIÓ

A vizsgált mintákban 1σ hibahatáron belül természetes aktivitáskoncentráció arányt mértünk a két urán (²³⁵U és ²³⁸U) izotópra (2. táblázat), amely értékek jó egyezést mutatnak az irodalmi adatokkal (0,0462; [13]). A kapott eredmények alapján az összes mintára használható a természetes uránizotóp aktivitáskoncentráció arány.

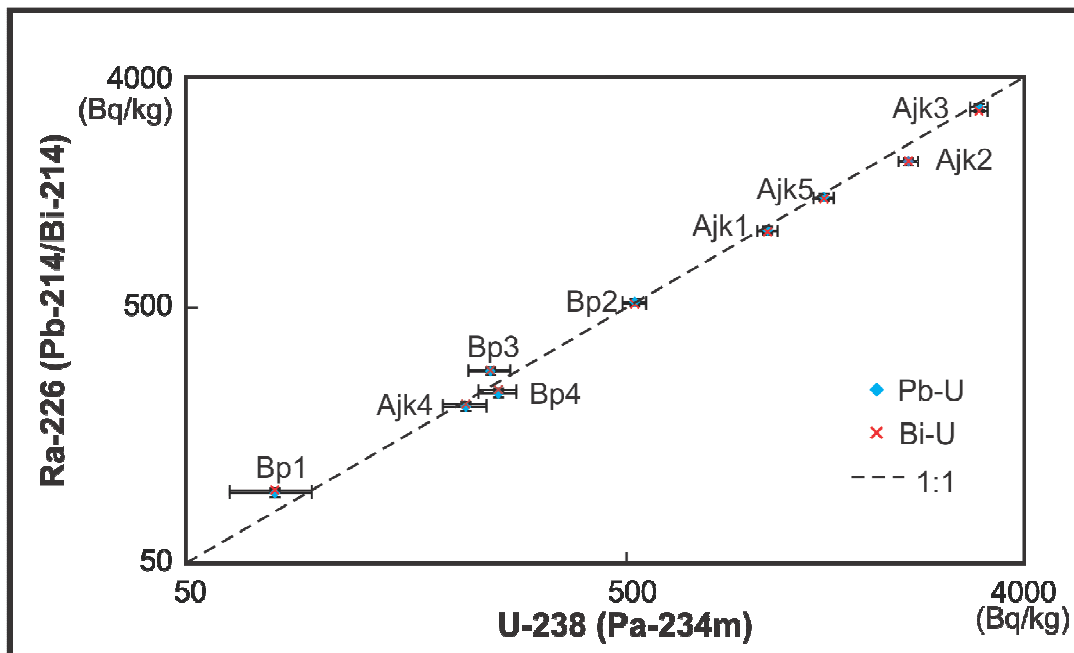
2. táblázat. A minták urán aktivitáskoncentráció értékei (²³⁵U és ²³⁸U)

Mintanév	Tömeg (g)	A_{U-235}/A_{U-238}	\pm (%)	\pm
Bp1	104,5	0,0569	21,7	0,0123
Bp2	81,6	0,0488	7,6	0,0037
Bp3	92,6	0,0560	11,9	0,0067
Bp4	105,7	0,0443	10,8	0,0048
Ajk1	127,1	0,0462	7	0,0032
Ajk2	91	0,0425	6,8	0,0029
Ajk3	94,4	0,0460	6,4	0,0030
Ajk4	114,6	0,0483	12,3	0,0060
Ajk5	85,5	0,0471	7	0,0033
Súly. átl. Budapest		0,0496	17	0,0085
Súly. átl. Ajka		0,0455	9	0,0041
Súly. átl. Össz.		0,0466	6,4	0,0030

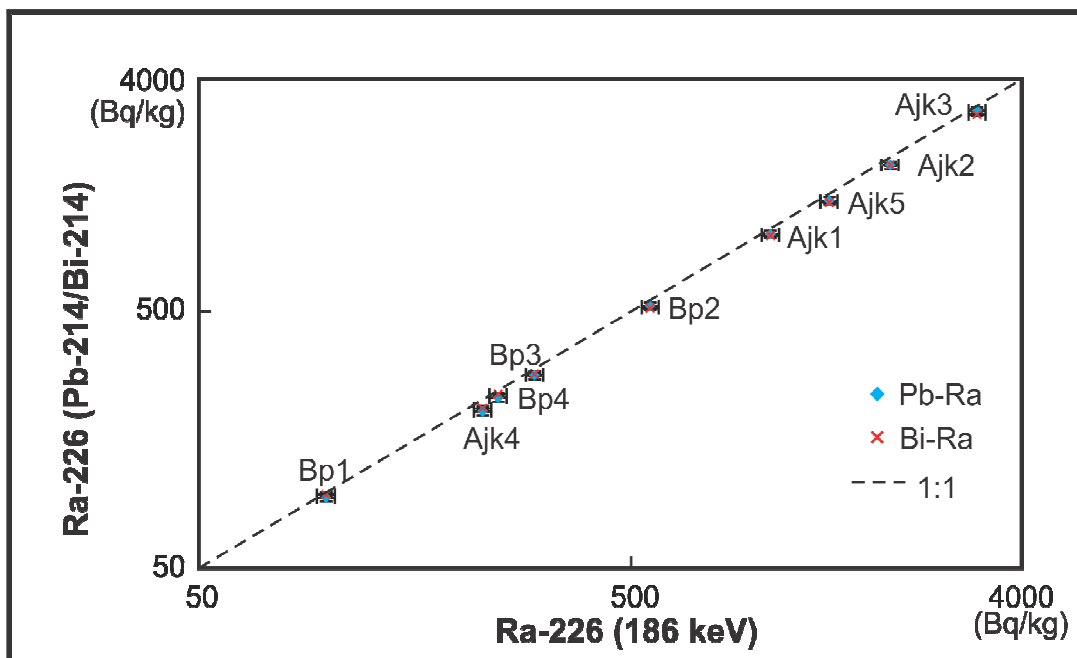
Súly. átl.: súlyozott átlag

A radon leányelemekből meghatározott rádium és a ^{234m}Pa 1001 keV-os csúcsából számított urán aktivitáskoncentrációk összevetése a szekuláris egyensúly fennállását mutatta a vizsgált salakminták nagy részében (1. ábra). Ez azt jelenti, hogy a vizsgált mintákban a

rádium megfelelő korrekciókkal a 186 keV-os csúcs beütésszámából is meghatározható. Ellenőrzésképpen a radon leányelemekből és a 186 keV-os csúcsból meghatározott rádium aktivitáskoncentrációkat is összehasonlítottuk (2. ábra), amelyek hibahatáron belüli egyezéseket mutattak.



1. ábra. A ^{234m}Pa 1001 keV-os csúcsából meghatározott ^{238}U aktivitáskoncentrációk összevetése a radon leányelemekből számolt ^{226}Ra aktivitáskoncentrációkkal.



2. ábra. A 186 keV-os csúcsból meghatározott ^{226}Ra aktivitáskoncentrációk összevetése a radon leányelemekből számolt ^{226}Ra aktivitáskoncentrációkkal.

Mivel a rádium saját csúcsából számolt értékek is alkalmasak a salakminták rádium aktivitáskoncentrációinak meghatározására, így nem kell 30 napot várni a rádium és leányelemei közti szekuláris egyensúly beállításáig, a mérés azonnal elvégezhető.

Az erőművi melléktermékekben a ^{226}Ra és ^{238}U közti szekuláris egyensúlyt ritkán tanulmányozzák. A fennállása elsősorban a szén geokémiai környezetétől és a benne lévő rádium és urán megkötődésétől, ásványos összetételétől függ. Ezek az elemek szerves és szervesetlen módon is kapcsolódhatnak a szénhez, amely nagymértékben meghatározza illékonyosságukat [14]. Például a szénben ásványos formában az urán oxidos uraninitként (UO_2) vagy szilikátos koffinitként (USiO_4) lehet jelen [15, 16]. Az oxidos forma az égetés során mobilizálja (vaporizálja) a szénben lévő uránt, míg a szilikátos forma nagy valószínűséggel helyben (olvadék fázisban) marad. A másik lehetőség, hogy a rádium nem tudja elhagyni a szilikátos olvadék fázist az égetés során és együtt marad az uránnal a salakban. A legtöbb vizsgált salakminta kapcsán arra a következtetésre jutottunk, hogy a rádium és urán valószínűleg azonos ásványi környezetben van jelen, amely az égetés során nem változik meg, így a szekuláris egyensúly is fennmarad. Statisztikus eltérés figyelhető meg a radon leányelemekből meghatározott rádium aktivitáskoncentráció és az uránaktivitás koncentrációja közt az Ajk2-es mintában (1. és 2. ábra). Ennek oka a két elem eltérő geokémiai viselkedése, az adott kazán égetési mechanizmusa és az adott szén sajátos fizikai és kémiai tulajdonságai lehetnek [15, 16]. Egyes irodalmi adatok alapján a szénben eleve nincs szekuláris egyensúlyban a rádium és az urán [15, 17], míg Karangelos és munkatársai [16] egyensúlyt mutattak ki az általuk vizsgált szénben. A kérdés megválaszolásához további geokémiai vizsgálatokra van szükség, azonban az kijelenthető, hogy gamma-spektrometriai módszerrel egyértelműen tanulmányozható a rádium és az urán közti szekuláris egyensúly erőművi salak mintákban.

A kapott aktivitáskoncentrációk alapján ($98 \pm 5 - 3152 \pm 144$ Bq/kg) a vizsgált házakban a salak építőanyagok a világlátnál (50 Bq/kg [18]) szignifikánsan nagyobb értékeket mutatnak, amely felhívja a figyelmet az egykori ipari régiók és a kikerülő szennyezőanyagok vizsgálatára, továbbá az építőanyagokban található radionuklidok minél pontosabb és lehetőleg gyors meghatározásának és minősítésének fontosságára.

KONKLÚZIÓ

Az ^{235}U - ^{238}U aktivitáskoncentráció arány és a ^{226}Ra és ^{238}U közti szekuláris egyensúly vizsgálatát végeztük el salak mintákon annak felderítésére, hogy a ^{226}Ra 186 keV-os csúcsa használható-e a rádium pontos meghatározására az ^{235}U interferenciája mellett. A két feltétel igazolása lehetővé tette a rádium 186 keV-os csúcsából történő pontos és gyors mérését. Az urán és rádium közti szekuláris egyensúly hiánya, ill. fennállása részben ismert geokémiai folyamatok függvénye. A módszer különösen előnyös lehet nagy mennyiségű minta vizsgálata esetén, ugyanis az azonos geokémiai közegből származó mintáknak csak egy szelektált csoportján szükséges a „30 napos” mérés elvégzése, míg a maradék mintákon a rádium mérése a 186 keV-os csúcs alapján történik.

A felkérésre elvégzett mérések jelzik a lakosság érdeklődését a beltéri környezetben található potenciális szennyező források megismerése iránt. Magyarország területén ma is számos olyan, régi építésű lakóházat találhatunk, ahol erőművi salakot és pernyét tartalmazó építőanyagot vagy szigetelőanyagot használtak fel. Az elvégzett vizsgálatok alapján a mérőrendszer alkalmas kis aktivitású környezeti minták radioaktivitásának részletes és pontos meghatározására. Ennek következtében a mérendő minták kiterjeszthetők más természetű – pl. talaj és vályog – minták mérésére is.

KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Köszönetünket fejezzük ki a Litoszféra Fluidum Kutatólaboratórium (ELTE TTK) és a Nukleáris Analitikai és Radiográfiai Laboratórium (MTA EK) tagjainak, továbbá Budapest és Ajka lakosainak, hogy lehetővé tették számunkra a minták begyűjtését.

IRODALOM

- [1] Kis, Z., Völgyesi, P., Szabó, Zs. (2013) DÖME - revitalizing a low-background counting chamber and developing a radon-tight sample holder for gamma-ray spectroscopy measurements. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 298, 2029–2035.
- [2] Németh, Cs., Somlai, J., Nényei, Á., Skrinýár, M., Kanyár, B., Németh, P., Hoffer, K. (2000) Measurement of gamma-dose caused by built in coal slags with elevated ^{226}Ra concentration, and the modeling of shielding. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 245, 287–291.
- [3] Szalay, S., Almássy, Gy., Pesty, L. és Lovas, I. (1959) Magyarország egyes fontosabb kőszénterületeinek átvizsgálása uránium nyomelőfordulás szempontjából. *Atomki Közlemény*, 1, 7.
- [4] Huy, N. Q., Luyen, T. V. (2004) A Method to Determine ^{238}U Activity in Environmental Soil Samples by Using 63.3-keV-Photopeak-Gamma HPGe Spectrometer. *Applied Radiation and Isotopes*, 61, 1419–1424.
- [5] Manolopoulou, M., Stoulos, St., Mironaki, D., Papastefanou, C. (2003) A New Technique for the Accurate Measurement of ^{226}Ra by Gamma Spectroscopy in Voluminous Samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 508, 362–366.
- [6] Somlai, J., Németh, Cs., Lendvai, Z., Bodnár, R. (1997) Dose Contribution from School Buildings Containing Coal Slag Insulation with Elevated Concentrations of Natural Radionuclides. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 218, 61–63.
- [7] Vidmar, T. (2005) EFFTRAN – A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 550, 603–608.
- [8] Vidmar, T. Kanisch, G., Vidmar, G. (2011) Calculation of true coincidence summing corrections for extended sources with EFFTRAN” *Applied Radiation and Isotopes*, 69, 908–911.
- [9] Muring, A., Gäfvert, T. (2013) Radon Tightness of Different Sample Sealing Methods for Gamma Spectrometric Measurements of ^{226}Ra . *Applied Radiation and Isotopes*, 81, 92–95.
- [10] Köhler, M., Niese, S., Gleisberg, B., Jenk, U., Nindel, K. (2000) Simultaneous Determination of Ra and Th Nuclides, ^{238}U and ^{227}Ac in Uranium Mining Waters by γ -Ray Spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 52, 717–723.
- [11] Be´ M-M, Chiste´ V, Dulieu C, Mougeot X, Chechev VP, Kondev FG, Nichols AL, Huang X, Wang B (2013) Monographie BIPM-5—Table of radionuclides, Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), Sevres
- [12] Janis v4.0, OECD Nuclear Energy Agency (2013) <http://www.oecd-neo.org/janis/>. Accessed 11 June 2014
- [13] Ebaid, YY., El-Mongy, S. A., Allam, K. A. (2005) ^{235}U γ -emission contribution to the 186 keV energy transition of ^{226}Ra in environmental samples activity calculations. *International Congress Series*, 1276, 409–411.
- [14] Eskenazy, G.M., Velichkov, D. (2012) Radium in Bulgarian coals. *International Journal of Coal Geology*, 94, 296–301.

-
- [15] Coles, D. G., Ragaini, R. C., Ondov, J. M. (1978) Behavior of natural radionuclides in western coal-fired power plants. *Environmental Science & Technology*, 12, 442–446.
- [16] Karangelos, D. J., Petropoulos N. P., Anagnostakis, M. J., Hinis, E. P., Simopoulos, S. E. (2004) Radiological characteristics and investigation of the radioactive equilibrium in the ashes produced in lignite-fired power plants. *Journal of Environmental Radioactivity*, 77, 233–246.
- [17] Tadmor, J. (1986) Radioactivity From Coal-Fired Power Plants: A Review. *Journal of Environmental Radioactivity*, 4, 177–204.
- [18] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. UNSCEAR Report to the General Assembly. (NY: UN) (1993).

A pályamű a SOMOS Alapítvány támogatásával készült