

Sugárvédelem 17. évf. 1. sz. (2024)

Tartalom

- PAPP Vanda , PAPP István , JANOVICS Róbert , NEMES Zoltán , KÉRI Mónika : Radioaktív hulladékok komplexképző tartalmának hatása a kötőanyag szerkezetére és kioldhatóságára 1-14 [866.47 kB - PDF]
- SARKADI Margit : A nukleáris medicina laborok környezeti hatásai, hatásági szempontok az OAH engedélyezési eljárásaiban 15-21 [256.71 kB - PDF]
- KOVÁCS Bence , SZŐNYI-PÁKAI Renáta , GÁSPÁR Lilla , ELEK Richárd : A személyi dozimetria fejlesztése az Izotóp Intézet Kft.-nél 22-32 [1.11 MB - PDF]
- JAKAB Dorottya , PÁZMÁNDI Tamás , ZAGYVAI Péter : Bizonytalanságok értékelése és kezelése a sugárvédelmi környezet-ellenőrzésben 33-51 [808.41 kB - PDF]
- KOCSONYA András , PÁNTYA Anna , SZABÓ Dezső , HARANGOZÓ Imréné , ZAGYVAI Péter , ENDRŐDI : Az egészsztestszámláló kalibrációja és kiértékelési eljárásainak fejlesztése 52-66 [914.18 kB - PDF]
- EGED Katalin , BÓTHI Zoltán : Elméleti megfontolások a radioaktív hulladék-tárolók hosszú távú hatásainak értékeléséhez a bioszférában - Bátaapáti NRHT munka alapján 67-83 [2.91 MB - PDF]

RADIOAKTÍV HULLADÉKOK KOMPLEXKÉPZŐ TARTALMÁNAK HATÁSA A KÖTŐANYAG SZERKEZETÉRE ÉS KIOLDHATÓSÁGÁRA

Papp Vanda^{1,2,3}, Papp István^{2,3}, Janovics Róbert³, Nemes Zoltán³, Kéri Mónika¹

¹ Debreceni Egyetem, Fizikai Kémiai Tanszék

² Debreceni Egyetem, Kémia Tudományok Doktori Iskola

³ Isotoptech Zrt.

papp.vanda@science.unideb.hu

A kézirat beérkezett: 2024. február 13.

Közlésre elfogadva: 2024. február.22.

Investigation of the structure of cement stone matrices related to the final disposal of radioactive waste – One of the most common conditioning methods for low and intermediate level radioactive waste is cementation, in which the waste is immobilized in a solid matrix. The macroscopic properties of the matrix materials are directly related to their porous structure, the slightest change of which can significantly influence the applicability possibilities. In our study, we investigated the structural changes during the interaction of cement binders of different compositions with water by liquid phase nuclear magnetic resonance (NMR) methods and the sorption properties of the binders by leaching experiments.

Keywords - NMR, cement, rehydration, diffusion, pore structure, leaching

A kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok egyik leggyakoribb kondicionálási eljárása a cementezés, mely során egy szilárd mátrixban immobilizálják a hulladékot. A mátrixanyagok makroszkopikus tulajdonságai közvetlen összefüggésben állnak a pórusszerkezetükkel, melynek már kisfokú megváltozása is jelentősen befolyásolhatja az alkalmazhatóságot. Munkánk során különböző összetételű cement alapú kötőanyagok vízzel való kölcsönhatására bekövetkező szerkezetváltozását vizsgáltuk folyékony közegű mágneses magrezonanciás (NMR) módszerekkel, valamint a kötőanyagok szorpciós tulajdonságát szabványszerinti kioldhatósági vizsgálatokkal.

Kulcsszavak – NMR, cement, rehidratáció, diffúzió, pórusszerkezet, kioldhatóság

IRODALMI BEVEZETŐ

Napjainkban az egyre növekvő energiaigényeknek legfeljebb csak 20 százalékát képesek fedezni a környezetbarát megújuló energiaforrások, valamint az intenzív energiatakarékossági irányzatok. A nukleáris energiatermelés nagyrészt mentes a jelenleg elterjedt hagyományos energiatermelési módok káros hatásaitól és alkalmas nagymennyiségű energia előállítására. Az energiatermelés során az atomerőmű működése, leszerelése közben, magában az atomerőmű üzemben, sőt a radioaktív izotópok különböző egyéb felhasználási területén is számos hulladék keletkezik [1-3]. A radioaktív hulladékokat veszélyességi szintjüktől függően kis, közepes és

nagy aktivitású hulladékokként csoportosíthatjuk, melyek kezelése és elhelyezése ennek megfelelően különböző módon valósítható meg. A kis és közepes aktivitású hulladékok leggyakoribb kondicionálási eljárása a cementezés, mely során egy szilárd mátrixban immobilizálják a radionuklidokat úgy, hogy azok kijutását a környezetbe hosszútávon megakadályozzák [2-6]. A technológia alapanyaga a portlandcement, mely szervesetlen kristályos anyagok keveréke [4]. A száraz cement vízzel keverése során különböző hidratációs termékek keletkeznek, melyek közt a fő fázisok a kristályos portlandit ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) és az amorf kalcium- szilikát-hidrát gél (CSH gél, $1,7 \text{ CaO} \cdot \text{SiO}_2 \cdot x \text{ H}_2\text{O}$) [2,4]. Ezek teszik ki a cementkő tömegének közel 80%-át, melyek mellett kisebb mennyiségben alumínium-, vas- és szulfáttartalmú fázisok is kialakulnak [4]. A hidratációt követően az elpárolgó víz helyén egy heterogén pórusos szerkezet marad vissza, melyben a következő pórusok különíthetők el: intra CSH réteg pórus ($d= 0,5- 1,8 \text{ nm}$), inter CSH gél pórus ($d= 2- 10 \text{ nm}$), kapilláris pórus ($d= 20 \text{ nm}- 1 \mu\text{m}$) és légpórus ($\mu\text{m}- \text{mm}$ -es nagyságrend) [8-10]. A cementkő hidratált fázisai számos lehetőséget biztosítanak az oldott formában jelenlévő radionuklidok megkötődési reakcióihoz, többek közt a felületi adszorpcióhoz, beépüléshez vagy a szilárd oldat képződéshez [4-6]. A leghatékonyabb szorpciós tulajdonsággal a CSH gél rendelkezik, mely nagy fajlagos felületének ($\sim 148 \text{ m}^2/\text{g}$) köszönhetően lehetőséget ad mind a kationok, mind az anionok megkötésére [4]. A portlandit fajlagos felülete ($\sim 6 \text{ m}^2/\text{g}$) bár sokkal kisebb a CSH géléhez képest, azonban a felületén található hidroxilcsoportoknak köszönhetően képes az erősen kötődő fémionok vagy anionok szorpciójára. [4] A radioaktív hulladékok több típusa is tartalmaz ^{137}Cs izotópot, mely egyik legjelentősebb közepesen hosszú felezési idejű hasadási termék. A cézium szorpciója főként a cement CSH gél fázisán megy végbe, amit jelentősen befolyásol a kompetitív ionok jelenléte (pl.: Ca, Na, K) és a cement összetétele (Ca/ Si aránya) [4-6].

A cement hulladék-kondicionálásra való felhasználása szempontjából fontos a szorpciós tulajdonságok javítása, amely különböző adalékanyagok (pl. mesterséges szilikátok, komplexképző anyagok) hozzáadásával érhető el. A metakaolin, mint mesterséges szilikát, puccolános és hidraulikus tulajdonságainak köszönhetően képes a cement hidratációja során a portlandittal reagálni és a CSH gélhez hasonló hidratációs terméket képezni, mely egyrészt javítja a cement szerkezetét, kedvezően változtatja a CSH gél Ca/ Si arányát, továbbá képes semlegesíteni a radioaktív hulladékok savas komponenseit [6,7]. A dekontaminálás során gyakran alkalmaznak komplexképző anyagokat (pl. citromsav, oxálsav, $\text{Na}_2\text{-EDTA}$), melyek így a radioaktív hulladékban is jelen lesznek. Ezek az adalékok és a képződött komplexek kémiai kölcsönhatásba léphetnek a cementhidratációs termékekkel, és így módosíthatják a kialakult cementkompozit felületi tulajdonságait és szerkezetét [11]. A kötőanyag összetételének akár kismértékű változtatása is jelentős hatással lehet annak pórusos szerkezetére, mely szignifikánsan befolyásolhatja többek közt a kötőanyag permeabilitását, szorpciós és mechanikai tulajdonságait. Ezek a paraméterek lényegesek a kötőanyag alkalmazásának szempontjából, ezért a szerkezet jellemzése, a cement vizes közegű viselkedésének vizsgálata elengedhetetlen.

A pórusos anyagok vízzel való kölcsönhatásának egyik leghatékonyabb vizsgálati módja a mágneses magrezonancián (NMR) alapuló módszerek, melyek a standard kioldódás vizsgálatokat sikeresen kiegészíthetik a víz mozgékonyságának és a hidratáció hatására kialakult szerkezetnek a jellemzésével. A módszerek alapja, hogy a vízmolekulákban található,

mágneses dipólusmomentummal rendelkező hidrogén atommagok (protonok) degenerált energiaszintjei mágneses térben felhasadnak, és elektromágneses sugárzással (rádiófrekvencia tartomány) gerjeszthetők (Zeeman-hatás). [12] Az NMR relaxometriás mérések során a mintában lévő protonok mágneses spinjeinek a gerjesztést követően az eredeti állapot felé való e-ad résznyi visszatérésnek az idejét, az ún. relaxációs időállandóját (T_1 vagy T_2) határozzuk meg. Ezen időállandók ismeretében megkülönböztethetők a mintában található eltérő mobilitású víztípusok, meghatározható adott víztartalomnál a felületi és póruskitöltő víz aránya, ennek változása a víztartalommal, vagy akár a pórusméret is a nm-es mérettartományban [11-14]. A relaxációs időállandók időbeli változásának követése pedig lehetőséget ad olyan folyamatok vizsgálatára, mint a cement érésének, vagy rehidratációjának követése [15]. Az NMR diffúziometria segítségével meghatározható a víz saját diffúziós (Brown-mozgás) együtthatója, melynek értéke jelentősen függ a folyadék rendszeren belüli elhelyezkedésétől, hiszen egy zárt térben a részecskék diffúziója gátolt lehet. Mágneses inhomogenitást tartalmazó minták esetén a paramágneses részecskék relaxáló hatása miatt a hagyományos módon nem vizsgálható a diffúzió. Ilyen rendszerek jellemzésére alkalmas az úgynevezett H_2O – D_2O csere diffúziós technika, mely alapja az, hogy a könnyű vízzel (H_2O) telített mintát nehézvízbe (D_2O) helyezve követjük a protonjel intenzitásának változását a mintán belül, ebből következtetve a folyadék mozgására a pórusrendszerben [16-19].

Munkánk célja, hogy különböző NMR relaxometriás technikák és az ICP-MS elemanalitikai módszer együttes alkalmazásával megállapítsuk a modell cementált hulladékcsomagokban található komplexképző ágens koncentrációjának (0-20 g/l) hatását a ^{133}Cs modellion kioldhatóságára, valamint a kötőanyag szerkezetére. A kisterű NMR módszerek segítségével a cement próbatestek szerkezetét vizsgáljuk: láthatjuk a komplexképzők hatását pórusszerkezetre, képet kaphatunk a kioldódás folyamán bekövetkező szerkezeti változásokról és meghatározhatjuk a víz saját diffúziós együtthatóját is a cementmátrixban. A minták ASTM C 1308-08 szabvány szerinti gyorsított kioldódás vizsgálata és a kioldott fázis ICP-MS elemanalízise pedig a ^{133}Cs modellion kötőanyagon belüli mozgásáról és a komplexképzők kioldódást befolyásoló hatásáról adnak információt. Az NMR vizsgálatok során meghatározott szerkezeti jellemzők ismeretében pedig komplex módon értelmezhetők a vizsgálat során kapott elemkioldódási profilok.

KÍSÉRLETI KÖRÜLMÉNYEK

Mintakészítés

A cement próbatestek 80% portlandcement (CEM I 42.5 N), 20% metakaolin (KM60) és ~0,5 víz/cement (V/C) tényezőnek megfelelő mennyiségű folyadék adagolásával készültek. A folyadék a víztípusok azonosítása és a diffúziós mérések esetén desztillált víz volt, míg a többi vizsgálathoz a próbatestek az alkalmazás körülményeit modellező savas kémhatású modelloldat felhasználásával készültek. A modelloldat 0,5:0,5:3,5:3,3 molarányban tartalmazott HNO_3 -t (65%, VWR, a.r.), KOH -t (Molar, a.r.), NaOH -t (Molar a.r.) és bórsavat (Molar, a.r.). Különböző koncentrációban (2 – 20 g/l) komplexképzőket is adtunk az oldathoz 1:1:1 tömegarányban: citromsavat (VWR, Reag. Ph. Eur.), oxálsavat (Molar, a.r.spec.), $\text{Na}_2\text{-EDTA}$ -t (Molar, puriss). Ezek mellett radioaktív izotópokat modellező ionok (2,45 mmol/l CsNO_3 , 5,47 mmol/l $\text{Ni}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, 2,24 mmol/l $\text{Nd}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 2,53 mmol/l KI , 90,61 mmol/l

KCl, 0,19 mmol/l NH_4ReO_4) is kerültek az oldatba. A homogenizált cement pasztát hengeres öntőformákba (2*0,6 cm) öntöttük, majd 28 napon keresztül 20°C-on, 100%-os páratartalom mellett érleltük. A megszilárdult mintákat a vizsgálatokhoz monolit vagy tört formában használtuk.

NMR Relaxometria

Az NMR relaxometriás vizsgálatokhoz a cement mintákat legalább három napon keresztül áztattuk ioncserélt vízben, majd egy 10 mm-es NMR csőbe helyeztük. A mérések egy 20 MHz-es kisterű NMR készülékkel (Minispec Bruker mq20) szobahőmérsékleten (25°C-on) történtek, CPMG impulzus szekvencia alkalmazásával. A vizsgálatokhoz 0,08 ms-os ekhóidőt és 0,5- 1 s-os várakozási időt alkalmaztunk. A kapott exponenciális görbéket inverz Laplace transzformációval, a Matlab szoftver alatt futó MERA (Multi Exponenciális Relaxációs Analízis) programmal, valamint a legkisebb négyzetek módszerén alapuló Origin programmal illesztettük. A kötőanyag áztatás hatására bekövetkező szerkezetváltozását repetitív relaxometriás mérésekkel követtük 368 órán keresztül, mely során a fentiekben leírt módon adott időközönként meghatároztuk a transzverzális relaxációs időállandókat (T_2).

H₂O – D₂O cserediffúzió

Az NMR diffúziometriás méréshez egy hengeres geometriájú, vízzel készült portlandcement mintát és egy 20% metakaolin tartalmú kompozitot választottunk (~20 mm magasságú, 6 mm átmérőjű). A mintákat több napon keresztül desztillált vízben áztattuk, majd 10-szeres ($\alpha = 10$) feleslegű nehézvízbe helyeztük, melynek a kémhatását ($pD \sim 13,8$) előtte cc. NaOD segítségével a cement pórusait kitöltő víz pH-jának megfelelően beállítottuk. A mérés során az idő függvényében FID méréseket végeztünk 500 scan felvételével és regisztráltuk a mintán belül elhelyezkedő víz mennyiségét, melyhez az egyes scan-ek közötti várakozási időt ~0,1 s-ra állítottuk. Az eredményként kapott multiexponenciális görbét a J. Crank által levezetett matematikai modellel illesztettük [4].

Gyorsított kioldódás-vizsgálat

A bevitt modellionok közül a ^{137}Cs -t modellező inaktív ^{133}Cs kioldhatóságát az ASTM C 1308-08 szabvány szerinti gyorsított kioldódási kísérlettel vizsgáltuk: a megszilárdult, hengeres geometriájú, 0-20 g/l komplexképző tartalmú cement testeket 90 ml desztillált vízbe áztattuk 11 napon keresztül ($T = 25^\circ\text{C}$). Az áztatás során 14 alkalommal, meghatározott időközönként cseréltük az áztató közeget (2, 5, 17, 24, 48, 72, 96, 120, 144, 168, 192, 216, 240, 264 óra). Az oldatok egy részét kivettük elemanalitikai célra és HNO_3 -val tartósítottuk. Az elemanalitikai vizsgálat előtt az oldatokat 0,45 μm -es cellulóz- acetát szűrőmembránon szűrtük. A kioldott ^{133}Cs mennyiségének meghatározása Agilent 7500 ICP-MS készülékkel történt. Belső standardként 200 $\mu\text{g/l}$ In oldatot használtunk. A mintákból kioldott cézium mennyiségét a tiszta cementből kioldott mennyiség figyelembevételével határoztuk meg. A mintakészítés során bevitt cézium mennyiségének ismeretében meghatároztuk a cézium inkrementális (IFL) és kumulatív kioldódási arányait (CFL) a komplexképzők koncentrációjának függvényében. A kumulatív kioldódási arány időfüggéséből az ASTM C 1308-08 szabvány szerint kiszámítható a modellion effektív diffúziós együtthatója. A kioldódás-görbéket a legkisebb négyzetek módszerével illesztettük (Origin, Excel).

EREDMÉNYEK

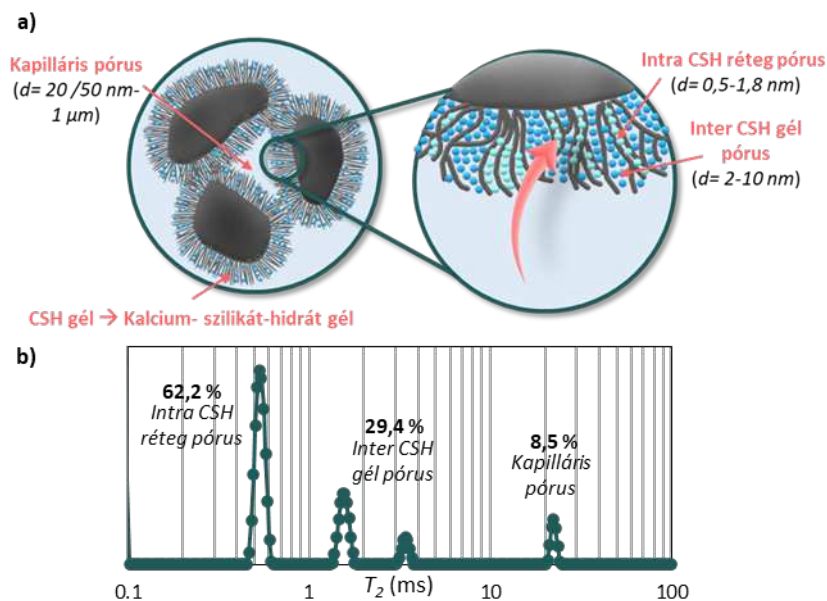
1. Kötőanyagok szerkezeti jellemzése – NMR relaxometria

1.1. Víz típusok azonosítása portlandcement esetén

A cementkő vízzel való kölcsönhatásainak vizsgálatához szükséges tisztában lennünk azzal, hogy a víz milyen formában van jelen a szilárd szerkezetben. A víztípusok azonosítására alkalmas módszer az NMR relaxometria, mellyel a porózus struktúrában elhelyezkedő víz transzverzális relaxációs idejét (T_2) mérjük [14,15]. Ha a vízmolekula a szilárd részecske felületéhez, vagy a pórusok falához kötődik, akkor a mozgása korlátozottabb lesz, a szilárd felület felgyorsítja a vízmolekula protonjainak mágneses relaxációját, így rövidebb relaxációs időt (T_{2s}) mérhetünk. Ha a víz a pórus falától távolabb helyezkedik el, esetleg tömbfázisban van, akkor relaxációs ideje hosszabb lesz (T_{2b}), értéke közelíthet a szabad víz relaxációs idejéhez [13]. Gyors cserefolyamat esetén a rendszer teljes relaxációja a következő egyenlettel írható le:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{V_s}{V} \times \frac{1}{T_{2s}} + \frac{V_b}{V} \times \frac{1}{T_{2b}} \quad (1)$$

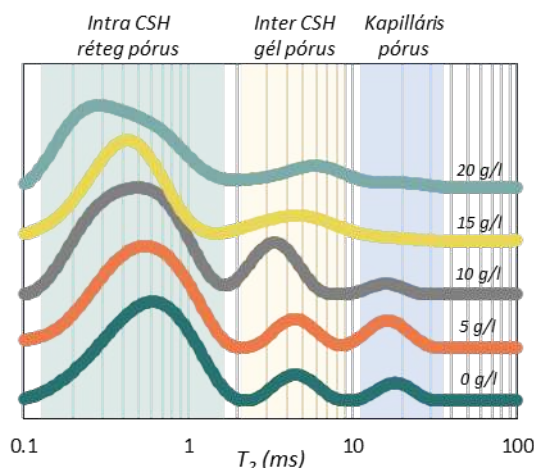
ahol V_s a felületi víz térfogata, V_b a tömbfázisban lévő víz térfogata, V a teljes térfogat, T_{2s} a felületi víz, T_{2b} a tömbfázisban lévő víz relaxációs ideje [13]. Amennyiben a rendszerünkben több különböző víztípus található, akkor a kapott csökkenő görbe több exponenciális tag összegeként értelmezhető. A cementkő minták esetén ezeket a transzverzális relaxációs időket (T_2) mértük, és a primer adatok inverz Laplace-transzformációjával T_2 eloszlásgörbéket kaptunk. Az 1. Ábra a tiszta cementkő minta eloszlásgörbéjét mutatja, amely készítésekor komplexképzőt és modellionokat nem alkalmaztunk. Ezt használtuk a víztípusok azonosítására és azok mennyiségi arányainak meghatározására [15]. A görbék maximumaiból látható, hogy négy különböző relaxációs tartományt tudtunk elkülöníteni, melyek négy víztípusnak felelnek meg: kis T_2 értéknél a kötöttebb vizet láthatjuk, míg a nagyobb T_2 relaxációs idő a mobilisabb víztípusokhoz tartozik. A maximumok területének aránya jól tükrözte az irodalmi térfogatarányokat, így ez alapján be tudtuk azonosítani az egyes térrészeket kitöltő víztípusokat: intra CSH réteg víz ($T_2 = 0,5-0,6$ ms), inter CSH gél víz ($T_2 = 1-5$ ms), kapilláris víz ($T_2 \sim 20$ ms) [9,13,14]. A cementre jellemző nagyméretű légpórusokat ezzel a módszerrel nem látjuk. A víztípusok ismeretében könnyebbé vált a további eredményeink értelmezése, valamint az összetételükben eltérő cementkövek összehasonlítása és a bekövetkező változások vizsgálata.



1. Ábra: A hidratált portlandcement szerkezetének sematikus ábrázolása (a) és a vizsgált tiszta portlandcement T_2 relaxációs idő eloszlása (b)

1.2. A hozzáadott komponensek hatása a cement alapú kötőanyagok relaxációs tulajdonságaira

Vizsgáltuk a kötőanyagokhoz hozzáadott komplexképzők, valamint a modellionok jelenlétének hatását a cement relaxációs tulajdonságaira, melyből következtettünk a szerkezetben végbemenő változásokra. A 2. Ábrán láthatók a tiszta cement esetén bemutatott víztípusok: intra CSH réteg víz ($T_2 = 0,1-1 \text{ ms}$, zöld), inter CSH gél víz ($T_2 = 2-10 \text{ ms}$, sárga), kapillaris víz ($T_2 \sim 20 \text{ ms}$, kék). A tiszta cement mintához képest a komplexképző tartalmú minták esetén a relaxációs domének pozíciója minimálisan változik, míg az egyes doménekhez rendelhető csúcsok szélesebb relaxációs idő tartományt fednek le. Az inter CSH gél pórús tartományban a tiszta cement esetén látott két relaxációs domén összeolvad. Ezek a változások valószínűleg a paramágneses tulajdonságú ionok relaxációt gyorsító hatásának, valamint a 20%-ban hozzáadott metakaolin szerkezetjavító, tömörítő hatásának tudható be. A komplexképzők koncentrációjának növelésével az egyes domének egyre inkább összeolvadnak, a kapillaris pórúsokhoz rendelhető csúcs relatív mennyisége lecsökken a másik kettőhöz képest. Összegezve azt mondhatjuk, hogy a hozzáadott komponensek nem okoznak jelentős változást, károsodást a kötőanyag pórusszerkezetében.

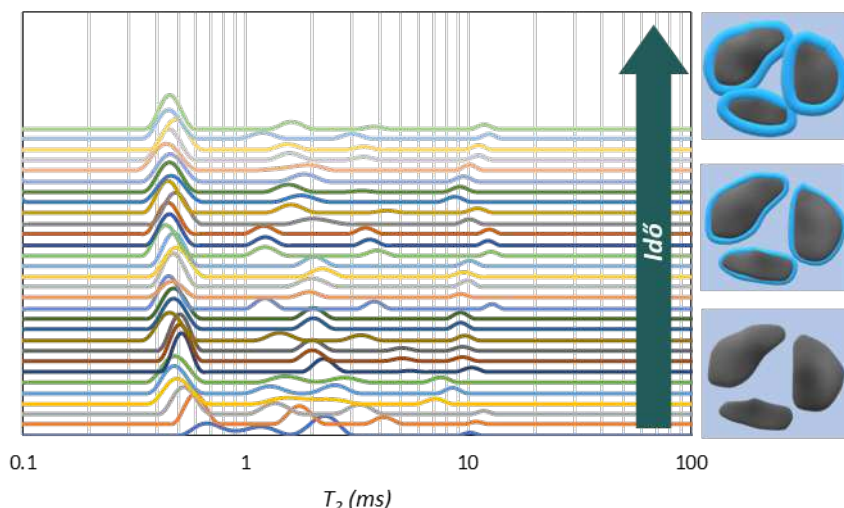


2. Ábra: Különböző komplexképző koncentráció mellett készült cement alapú kötőanyag T_2 relaxációs idő eloszlásai, az egyes pórusokhoz rendelhető víztípusok jelölésével.

2. A cement alapú kötőanyagok kioldhatósági tulajdonságai

2.1. A kioldódás során bekövetkező szerkezeti változások - a rehidratáció

A radionuklidok kioldhatósága egy hulladékmátrixból jelentősen függ az izotóp és a kötőanyag közötti kölcsönhatásokon túl a kötőanyag pórusos szerkezetétől is, hiszen az izotóp kioldódását, diffúzióját jelentősen befolyásolja a szerkezet komplexitása. A cement alapú kötőanyagok érdekesnek bizonyulnak ilyen szempontból, mert a megszilárdult cement széles mérettartományú, összetett pórusszerkezettel rendelkezik. Ráadásul ez a szerkezet minimálisan változhat, ha a kötőanyag vízzel érintkezik, mely folyamatot rehidratációnak nevezünk [15]. A mérések során észrevettük, hogy a T_2 relaxációs időeloszlások változást mutatnak attól függően, hogy a cementminta hány napja áll vízben, így ezt a folyamatot is vizsgáltuk egy 10 g/l komplexképző koncentráció mellett készült minta esetén 15 napon keresztül, 12 óránként (3. Ábra). Azt tapasztaltuk, hogy 2 nap alatt töltődnek fel a száradás hatására vizet veszített CSH réteg pórusok, melyhez tartozó T_2 relaxációs időérték ezt követően stabilizálódik. A CSH gél pórusokhoz rendelhető tartományban a jellemző T_2 domének pozíciójukat tekintve a folyamat során szórnak. A kapilláris pórusokhoz rendelhető T_2 értékek minimálisan nőnek. A domének szórását egyrészt magyarázhatja az áztatás hatására bekövetkező modellionok kioldódása, melyek relaxációt befolyásoló hatása a folyamat során eltérő lehet. Másrészt pedig a rehidratáció hatására feltöltődő és megduzzadó CSH gél változása, valamint a CSH gélt és a kapilláris pórusokat kitöltő vízdomének közötti csere okozhatja.



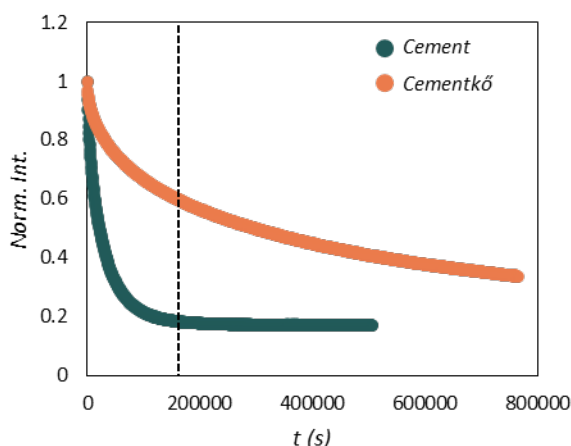
3. Ábra: T_2 relaxációs idő eloszlásának változása az áztatás idejének növelésével

2.2. Víz mozgása a kioldódás során – NMR diffúziometria

A víz kötőanyagban belüli mozgásának vizsgálatát számos tényező megnehezíti, melyeket az úgynevezett H_2O - D_2O csere diffúziós technika segítségével kiküszöbölhetünk, így meghatározhatóvá válik a víz diffúziós együtthatója akár egy 3 (m/m)% vasat tartalmazó mintában is. A mérés során egy „relaxációs szűrő” segítségével csak a cement mátrixban lévő, rövid relaxációs idejű H_2O protonjait detektáljuk [15,16]. A mért jel intenzitása időben folyamatosan csökken a cementkövet körülvevő nehézvízzel történő cserefolyamat következtében. A kapott exponenciális görbét az alábbi matematikai modellel illesztettük, ahol a henger palástja (C_{cyl}) és alaplapja (C_{ps}) menti diffúziós folyamatok több exponenciális szorzataként szerepelnek:

$$C^* = C_{ps}C_{cyl} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{2\alpha(1+\alpha)}{1+\alpha+\alpha^2 p_n^2} \exp\left(-D_p p_n^2 \frac{t}{l^2}\right) \times \sum_{n=0}^{\infty} \frac{4\alpha(1+\alpha)}{4+4\alpha+\alpha^2 p_n^2} \exp\left(-D_p p_n^2 \frac{t}{r^2}\right) \quad (2)$$

C^* a könnyű víz koncentrációjának változása, α a könnyű víz- nehézvíz térfogataránya, p_n a hibafüggvény négyzetgyök értékei, D_p a víz diffúziós együtthatója, t a mérés időtartama, r a henger sugara, l a henger magassága. [15-17] A H_2O - D_2O csere diffúziós módszerrel egy tiszta portlandcement minta és egy 20% metakaolint tartalmazó minta esetén határoztuk meg a víz kötőanyagokban belüli diffúziós együtthatóját. A minták kiválasztását az indokolja, hogy a modell hulladékcsomagokban a cement mellé adagolt komponensek közül a metakaolinnak van a legjelentősebb szerkezetbefolyásoló hatása, illetve a cementben lévő vas mellé nem szerettünk volna további paramágneses „szennyezőt” bevinni. A 4. Ábrán láthatók a H_2O - D_2O cseréből származó jelintenzitás csökkenést mutató görbék a cement és a metakaolin tartalmú kompozit esetén. A két görbe összehasonlítása alapján jelentős eltérések figyelhetők meg: a jelintenzitás értéke az első két nap alatt (szaggatott vonallal jelölve) a tiszta cement esetén a kezdeti érték 17%-ára csökkent, majd a mérés során tovább nem változott. Ezzel szemben a metakaolinos mintánál két nap alatt csak közel 59%-os jelintenzitás csökkenést tapasztaltunk és a mérés végére sem csökkent a kiindulási érték 34%-a alá.



4. Ábra: A H_2O - D_2O csere diffúziós módszerrel mért jelintenzitás csökkenés tiszta Portland cement (zöld) és egy 20%-ban metakaolint tartalmazó kompozit esetén (narancs).

A fent említett modellel történő illesztés (illesztési hiba $<10\%$) során három különböző diffúziós folyamatot tudtunk elkülöníteni, melyek jóval lassabbak voltak, mint a szabad víz diffúziója ($D = 2,3 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$), tehát a rendszerünkben erősen gátolt a víz mozgása [15]. A leglassabb diffúziót mutató tagot ($D_{\text{cement}} = 3,1 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$; $D_{\text{cement}+20\%\text{metakaolin}} = 8,2 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$) a CSH gél rétegben elhelyezkedő vízhez rendeltük, minthogy a duzzadt gél rétegben a víz diffúziója akadályozott. Ehhez képest a kapilláris pórusok méretükből adódóan szabadabb mozgást tesznek lehetővé a víz számára, így ezekhez a pórusokhoz rendeltük a második diffúziós együtthatót ($D_{\text{cement}} = 2,4 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ és $9,6 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$; $D_{\text{cement}+20\%\text{metakaolin}} = 2,3$ - $2,4 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$). [15] Látható, hogy a metakaolin hatására a víz diffúziós együtthatójára egy nagyságrenddel kisebb értéket kaptunk a nagyobb pórusok esetén a tiszta cementhez képest, mely a metakaolin szerkezetjavító hatásával magyarázható.

2.3. Cézium kioldódása cement alapú kötőanyagokból – a komplexképző ágens koncentrációjának hatása

A cézium-137 az egyik legveszélyesebb radionuklid a természetre és az emberi egészségre nézve, hosszú felezési ideje és magas radioaktivitása miatt. Azonban számos radioaktív hulladéktípusban megtalálható [4]. A hulladék kondicionálása során a kötőanyag egy fontos tulajdonsága a radionuklid-visszatartó képesség, melyet jelentősen befolyásolhat a szilárdítandó hulladék összetétele, komplexképző tartalma. A komplexképző ágens hatással lehetnek a komplexképzésre hajlamos radionuklidok kioldhatóságára [11]. A cézium csak kevésbé hajlamos a komplexképzésre, azonban vizsgálataink során azt tapasztaltuk, hogy a komplexképző koncentrációja befolyásolja a cézium (esetünkben a radioaktív ^{137}Cs -t modellező ^{133}Cs -ét) kioldódását a cement kompozitokból.

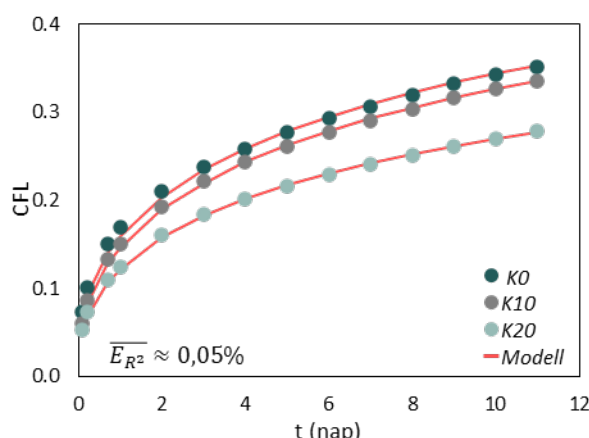
A ICP- MS analízis során meghatározott koncentrációk ($i a_n$) és a mintakészítés során bevitt cézium koncentráció ($i a_0$) hányadából meghatároztuk az inkrementális kioldódási arányt (IFL), a következő képlet szerint [19]:

$$IFL = \frac{i a_n}{i a_0} \quad (3)$$

Az egyes kioldási időintervallumokra (j) számított IFL értékek összegzéséből pedig a kumulatív kioldódás arányokat (CFL) határoztuk meg:

$$CFL_j = \frac{\sum_{n=1}^j ia_n}{iA_0} = \sum_{n=1}^j IFL_j \quad (4)$$

Az 5. Ábrán különböző komplexképző koncentráció esetén láthatók a számított kumulatív kioldódás arányok az áztatási/ kioldási idők függvényében. A telítésszerű görbék lefutásai alapján azt láthatjuk, hogy a komplexképző tartalom növelésével arányosan csökken a kioldott cézium aránya. Míg 0 g/l komplexképző tartalom esetén a 35,2%-a oldódott ki a bevitt cézium mennyiségének, addig 10 g/l esetén 33,6%, míg 20 g/l esetén csak a 27,8%-a, vagyis a komplexképző tartalom valamelyest hatással volt a kötőanyag szorpciós tulajdonságára.



5. Ábra: A ^{133}Cs kioldódási profilja (jelölők) különböző komplexképző tartalmú cement mátrixok esetén és két diffúziós taggal modellezett kioldódás görbék (piros vonal).

Az ASTM C 1308-08 szabvány szerint a cézium effektív diffúziós együttható értéke meghatározható a különböző komplexképző tartalmú minták esetén, a kumulatív kioldódási arányok (CFL) időfüggéséből:

$$CFL = \frac{\sum a_n}{A_0} = 2 \frac{S}{V} \left[\frac{D_e t}{\pi} \right]^{1/2} \quad (5)$$

ahol S a próbatest felszíne [cm^2], V a próbatest térfogata [cm^3], D_e az effektív diffúziós együttható [cm^2/nap], t pedig a kumulatív kioldódás arány meghatározásnak időpontja [nap] [19]. Ez a modell azonban csak $CFL < 0,2$ -nél esetén alkalmazható: ekkor a próbatest félig végtelen közegnek tekinthető a diffúziós folyamat szempontjából. Esetünkben azonban a kisméretű cementmintákból ($r = 0,3$ cm, $h = 2$ cm) ennél nagyobb mértékű cézium kioldódást tapasztaltunk. Amennyiben a $CFL > 0,2$, akkor a próbatest véges közegnek számít és figyelembe kell venni a szilárd anyag kimosódás miatti kimerülését [19]. Ez esetben a kumulatív kioldódási arányt (CFL) kettős sorozatú kifejezésként számítjuk ki:

$$CFL = \frac{\sum a_n}{A_0} = 1 - \frac{32}{\pi^2} S_p(t) S_c(t) \quad (6)$$

ahol S_p és S_c tagok a henger alapján és palástján keresztül történő diffúziót írják le. Ezeket a tagokat Pescatore zárt formában definiálta egy maximális abszolút hibafüggvény (E) bevezetése mellett:

$$S_p(t) = S_{p,N}(t) + E_{p,N}(t) \quad (7)$$

ahol $S_{p,N}$ tovább definiálható egy N tagszámú diffúziós folyamat minden n -edik tagjára, ahol az adott ionhoz eltérő effektív diffúziós együttható rendelhető (D_e), a henger magasságának (H) ismeretében [19,20].

$$S_{p,N}(t) = \sum_{n=1}^{N-1} \frac{\exp(-(2n-1)^2 \gamma^2(t))}{(2n-1)^2} + \frac{N}{(2N-1)^2} \exp[-(2N-1)^2 \gamma^2(t)] - \left(\frac{\pi^{1/2}}{2}\right) \gamma(t) \operatorname{erfc}[(2N-1)\gamma(t)] \quad (8)$$

$$\gamma(t) = \frac{\pi(D_e t)^{1/2}}{H} \quad (9)$$

Az alaplapokon (S_p) keresztül történő diffúziós folyamatokhoz tartozó maximális abszolút hiba ($E_{p,N}$) a következőképp számítható:

$$0 < E_{p,N}(t) < \frac{1}{6(2N-1)} \left[\gamma^2(t) + \frac{2}{(2N-1)^2} \right] \exp[-(2N-1)^2 \gamma^2(t)] \quad (10)$$

A henger palástján (S_c) keresztül történő diffúzió is az előzőhöz hasonlóan két tagra bontható:

$$S_c(t) = S_{c,M}(t) + E_{c,M}(t) \quad (11)$$

ahol $S_{c,M}$ kiszámítható egy M tagszámú diffúziós folyamat ($M \gg 1$) minden m -edik tagjára a henger sugarának (R) és az adott taghoz rendelhető effektív diffúziós együttható ismeretében a következőképp:

$$S_{c,M}(t) = \sum_{m=1}^{M-1} \frac{\exp(-\beta_m^2 \theta^2(t))}{\beta_m^2} + \left[\frac{1}{\beta_M f_M} + \frac{1}{2\beta_M^2} \right] \exp[-\beta_M^2 \theta^2(t)] - \frac{\pi^{1/2} \theta(t)}{f_M} \operatorname{erfc}[\beta_M \theta(t)] \quad (12)$$

$$f_M = \pi - \frac{1}{8\pi M^2} \quad (13)$$

$$\theta(t) = \frac{(D_e t)^{1/2}}{R} \quad (14)$$

ahol β_m a nulladrendű hengeres Bessel-függvény m -edik nullapontját jelenti [19,20]. A paláston (S_c) keresztül történő diffúziós folyamatokhoz tartozó maximális abszolút hiba ($E_{c,M}$):

$$E_{c,M}(t) < \frac{f_M}{6\beta_M} \left[\theta^2(t) + \frac{1}{\beta_M^2} \right] \exp[-\beta_M^2 \theta^2(t)] \quad (15)$$

A primer adatsort ezzel a komplex modellel illesztettük a legkisebb négyzetek módszerével, mely során 1-3 diffúziós folyamatot feltételeztünk. A meghatározott diffúziós együttható értékeket a modellbe helyettesítve vizsgáltuk az optimalizált modellegörbe CFL-értéke és a mért érték közötti eltérést, melyből meghatároztuk az illesztés relatív hibáját:

$$E_{R^2} = 100 \times \frac{\sum_{i=1}^N (CFL_{i,model} - CFL_{i,mért})^2}{CFL_{N,mért}} \quad (16)$$

ahol N a mérési pontok száma. Amennyiben az így meghatározott hibaérték $E_{R^2} \leq 0,5\%$, akkor a modell precízen reprezentálja az adatsort [19]. Az illesztések során a két- és háromtagú diffúziós folyamatot leíró modellel sikerült ezt az illesztési hibát elérnünk, melyek közül a háromtagú modell esetén meghatározott értékekből kettő azonos nagyságrendű érték volt. Jelenlegi eredményeink alapján azt mondhatjuk, hogy a cézium cementből való kioldódását legalább két eltérő nagyságrendű effektív diffúziós együtthatóval jellemezhetjük. A komplexképző tartalom növelésével az effektív diffúziós együtthatók (D_1 - D_3) értékének csökkenését figyeltük meg, melyek az 1. Táblázatban láthatók összegezve. A céziumra

meghatározott effektív diffúziós együtthatók legnagyobb értékű tagjai jó egyezést mutatnak az irodalomban is fellelhető értékekkel (6.0×10^{-13} - 1.0×10^{-14} m²/s) [21,22].

1. Táblázat: A cementhez hozzáadott komplexképző ágensek mennyiségének hatása a ¹³³Cs cementből való kioldódását jellemző effektív diffúziós együtthatóira.

Kód	Komplexképző tartalom (g/l)	D_1 (m ² /s)	D_2 (m ² /s)	D_3 (m ² /s)	E_{R^2}
K0	0	1.37×10^{-13}	5.98×10^{-15}	3.21×10^{-15}	0.10
K10	10	1.30×10^{-13}	5.29×10^{-15}	2.82×10^{-15}	0.03
K20	20	1.16×10^{-13}	1.74×10^{-15}	5.41×10^{-16}	0.03

3. Komplexképző ágensek koncentrációjának hatása a cézium cement mátrixból való kioldhatóságára – összegzés

Munkánk során a kisterű NMR relaxometriás technika és az ICP-MS elemanalitikai módszer együttes alkalmazásával követtük a ¹³³Cs modellion kioldhatóságát különböző komplexképző tartalmú cementalapú kötőanyagból. A komplexképző tartalom hatását nem csak a modellion kioldásának, hanem a cement szerkezetének szempontjából is vizsgáltuk. A kötőanyagok T_2 relaxációs idő eloszlásai alapján nem láttunk szignifikáns különbséget a komplexképzők koncentrációjának növelésével. A cement szerkezetét jellemző intra CSH réteg pórusok dominanciája nőtt, míg a kapilláris pórusoké csökkent kissé a komplexképző tartalom növelésével, mely nagy valószínűséggel a keletkező csapadékok jelenlétével magyarázható. A H₂O – D₂O cserediffúziós technika segítségével két diffúziós folyamatot tudtunk elkülöníteni a komplexképzőt nem tartalmazó minta esetén, melyben az adalékanyagként hozzáadott mesterséges szilikát (metakaolin) lassította a víz kötőanyagon belüli mozgását a tiszta cementhez képest ($D_1 = 8,2 \times 10^{-12}$ m²/s; $D_2 = 2,3-2,4 \times 10^{-11}$ m²/s). A kötőanyagokon két módszerrel végeztünk kioldhatósági kísérletet: NMR relaxometriásan a szerkezetben bekövetkező változást, a CSH gél duzzadását követtük, míg a kioldódási kísérlettel és a kioldott fázisok ICP- MS analízisével a ¹³³Cs kioldott mennyiségét határoztuk meg. A cézium nem hajlamos komplexképzésre, és kioldódását nem kellene befolyásolnia a komplexképzők koncentrációjának, azonban azt tapasztaltuk, hogy a komplexképző koncentrációjának növelésével csökkent a kioldódott cézium mennyisége (35,2%-ról 27,8%-ra 20 g/l komplexképző esetén). Ezentúl a kumulatív kioldódás arányok időbeli változásának modellezése során meghatározott effektív diffúziós együtthatók értéke is csökkent a komplexképző-koncentráció növelésének hatására. A vízre kapott diffúziós együtthatókhoz képest a cézium esetén lassabb diffúziós folyamatokat találtunk, mely a komplexképzők és modellionok jelenlétében levált kémiai csapadékok mozgást gátló hatásához, illetve a cézium mozgását lassító szorpciós folyamatokhoz is köthető. Ezen megfigyelések, miszerint a komplexképző koncentrációja kismértékben változtatja a kötőanyag szerkezetét, valamint csökkenti a Cs kioldhatóságát és diffúziós sebességét, a cézium szorpciójáért felelős CSH gél összetételének és/vagy szerkezetének változásával magyarázhatók. A bevezető részben leírtak szerint a cézium megkötését jelentősen befolyásolhatja a CSH gélen belül a Ca/Si arány, melynek csökkenésével nő a cézium szorpciója [4,7]. Amennyiben a Ca/Si arány alacsony, úgy

a pórusvízben is alacsony lesz a Ca^{2+} koncentrációja, mely a CSH gélben található rétegek felületi töltését befolyásolja. Alacsony Ca^{2+} koncentráció esetén a magas pH hatására deprotonálódik a CSH rétegek felülete, mely így több kedvező szorpciós helyet biztosít a cézium számára [4]. Másrészt a kalcium koncentrációjának csökkenése megváltoztathatja a CSH gél összetételét oly módon, hogy a metakaolin alumíniumtartalma is jelentősebb szerepet játszik a CSH gélhez hasonló kalcium-alumínium-szilikát-hidrát (CASH) képzésében [4]. Ez utóbbi is kedvező szorpciós helyet biztosít a cézium számára. De miért is csökkenne a kalcium koncentrációja a komplexképzők koncentrációjának növelésével? Azért, mert a kalcium képes a komplexképző ágensekkel komplexet és csapadékot képezni, mely így megváltoztatja a CSH gél képződéséhez elérhető oldott kalciumtartalmat. Az oxálsav a kalciummal kalcium-oxalát-hidrát csapadékot képezhet [2,11]. A hozzáférhető kalcium koncentrációjában történő változás így molekuláris szinten befolyásolhatja a CSH gél szerkezetét, mely bár NMR relaxometriásan kevésbé látható szerkezeti változáshoz vezethet, de így is lassíthatja a cézium rendszeren belüli diffúzióját. Összegezve tehát a komplexképzők koncentrációja közvetett módon a kötőanyag szerkezetének molekuláris szintű megváltoztatása által képes befolyásolni a cézium kioldhatóságát.

ÖSSZEFOGLALÁS

Munkánk során több kisterű NMR technika, gyorsított kioldódás vizsgálat és ICP-MS analízis komplex alkalmazásával sikerült jellemeznünk a komplexképző ágensek koncentrációjának hatását a vizsgált kötőanyagok szerkezetére és a ^{133}Cs kioldódására. A minták relaxometriás összehasonlításával látható volt a komplexképzők minimális hatása a kötőanyag pórusszerkezetére, mely a kioldódás során bekövetkező rehidratációs folyamatok hatására kismértékben duzzadhat. A komplexképzők koncentrációjának növelése főként a cézium kioldódását lassította, mivel a komplexképző ágensek csapadékképzés során csökkenthették a cement pórusvízének kalcium tartalmát, ezzel befolyásolva a cézium szorpcióban domináns CSH gél molekuláris szintű szerkezetét. Eredményeink fontos bemenő adatokat szolgáltathatnak a radioaktív hulladéktárolók biztonságnövelő intézkedéseikhez szorosan kapcsolódó terjedési modellszámításokhoz, továbbá a szilárdításra használt kötőanyagok fejlesztésével kapcsolatos kutatásokhoz.

IRODALOM

- [1] Zagvyai P és munkatársai, A nukleáris üzemanyagciklus radioaktív hulladékai, Egyetemi jegyzet, 2013, Letöltve: https://www.energia.mta.hu/~osan/SH_7_2_11/Nuklearis_uzemanyagciklus_radioaktiv_hulladekai_MTA_EK.pdf
- [2] F.P. Glasser, Cements in Radioactive Waste Disposal, International Atomic Energy Agency (IAEA), (2013) 30.
- [3] J. Kořátková, J. Zatloukal, P. Reiterman, K. Kolář, Concrete and cement composites used for radioactive waste deposition, Journal of Environmental Radioactivity (2017) 178-179 147.
- [4] M. Ochs, D. Mallants, L. Wang, in: M. Ochs, D. Mallants, L. Wang (Eds.), Radionuclide and Metal Sorption on Cement and Concrete, Springer International Publishing, Cham, (2016) 5-76.

- [5] M.L.D. Gougar, B.E. Scheetz, D.M. Roy, Ettringite and CSH Portland cement phases for waste ion immobilization: A review, *Waste Management* 16 (1996) 295
- [6] B. Batchelor, Overview of waste stabilization with cement, *Waste Management*, V. 26, (2006) 689-698.
- [7] J. Ambroise, S. Maximilien, J. Pera, Properties of Metakaolin blended cements, *Advanced Cement Based Materials*, Vol. 1, Iss. 4, (1994) 161-168.
- [8] P.-C. Aïtcin, R.J. Flatt (Eds.), *Science and Technology of Concrete Admixtures*, Woodhead Publishing (2016)
- [9] R.F. Feldman, P.J. Sereda, A new model for hydrated portland cement and its practical implications, *Engineering Journal*. 53 (1970) 53.
- [10] O. M. Jensen, P. F. Hansen, Water-entrained cement-based materials: I. Principles and theoretical background, *Cement and Concrete Research*, Vol. 31, Iss. 4, (2001) 647-654,
- [11] S. Smillie and F. P. Glasser, Reaction of EDTA, oxalic acid and citric acid with Portland cement, *Advances in Cement Research* (1999) 11:2, 97-101
- [12] R. Kimmich, *NMR: Tomography, Diffusometry, Relaxometry*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, (1997), 116-124.
- [13] S. G. Allen, P. C. L. Stephenson, J. H. Strange; Morphology of porous media studied by nuclear magnetic resonance. *Journal of Chemical Physics* (1997) 106 (18): 7802–7809.
- [14] A. Bede, A. Scurtu, I. Ardelean, NMR relaxation of molecules confined inside the cement paste pores under partially saturated conditions, *Cement and Concrete Research* 89 (2016) 56.
- [15] V. Papp, R. Janovics, T. P. Kertész, Z. Nemes, T. Fodor, I. Bányai, M. Kéri, State and role of water confined in cement and composites modified with metakaolin and additives, *Journal of Molecular Liquids*, Vol. 388, (2023) 122716.
- [16] M. Fleury, G. Berthe, T. Chevalier, Diffusion of water in industrial cement and concrete, *Magn Reson Imaging* 56 (2019) 32.
- [17] M. Fleury, T. Chevalier, G. Berthe, W. Dridi, M. Adadji, Water diffusion measurements in cement paste, mortar and concrete using a fast NMR based technique, *Construction and Building Materials* 259 (2020) 119843.
- [18] C. J., *Mathematics of diffusion*. 2nd edn. Clarendon Press, Oxford, 1975.
- [19] Standard Test Method for Accelerated Leach Test for Diffusive Releases from Solidified Waste and a Computer Program to Model Diffusive, Fractional Leaching from Cylindrical Waste Forms, ASTM C1308-08 Standard (2017)
- [20] C. Pescatore, Improved expressions for modeling diffusive, fractional cumulative leaching from finite-size waste forms, *Waste Management*, Vol. 10, Iss. 2, (1990) 155-159.
- [21] M. García-Gutiérrez, T. Missana, M. Mingarro, J. Morejón, J.L. Cormenzana, Cesium diffusion in mortars from different cements used in radioactive waste repositories, *Applied Geochemistry*, Vol. 98, (2018) 10-16.
- [22] I. Sato, K. Maeda, M. Suto, M. Osaka, T. Usuki & S.Koyama, Penetration behavior of water solution containing radioactive species into dried concrete/mortar and epoxy resin materials, *Journal of Nuclear Science and Technology*, (2015) 52:4, 580-587.

KÖSZÖNETNYÍLVÁNÍTÁS

Készült a SOMOS Alapítvány támogatásával. A RH/322-2/2022 (Papp V.) és RH/527-14/2021 (Papp I.) számú projektek a Kulturális és Innovációs Minisztérium Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Alapból nyújtott támogatásával, a KDP-2021 és KDP-2020 pályázati program finanszírozásában valósult meg. A kutatás az RHK szerződésének keretében valósult meg.

A NUKLEÁRIS MEDICINA LABOROK KÖRNYEZETI HATÁSAI, HATÓSÁGI SZEMPONTOK AZ OAH ENGEDÉLYEZÉSI ELJÁRÁSAIBAN

Sarkadi Margit
margo.sarkadi@gmail.com

A kézirat beérkezett: 2024.február 27.

Közlésre elfogadva: 2024. május 27.

The patients who have undergone isotope diagnostic tests and isotope therapy treatments leave the nuclear medicine labs carrying different levels of radioactivity in their bodies, which means indirect emissions. Emissions from radioactive waste and waste contaminated with radioactivity result in direct emissions.

In the publication, I summarize the environmental effects of indirect emissions and direct emissions, the conditions to discharge patients, the fulfillment of the conditions, taking into account the path of the patients, radioactive waste management, and the official requirements during the licensing procedures. The activity of the radiopharmaceuticals administered to the patients, the type and radiation energy of the isotopes used, and the type and quantity of the radioactive waste generated are very important parameters.

I have tried to present the connection between the type and activity of radiopharmaceuticals used in diagnostic and therapeutic nuclear medicine laboratories, indirect emissions caused by radioactivity in the patients' bodies, and the direct emissions and environmental effects of the generated radioactive and radioactivity-contaminated waste.

Keywords: indirect and direct emission, radioactive waste, environmental impact

A nukleáris medicina laborokból az izotópdiagnosztikai vizsgálatokon és az izotópterápiás kezeléseken átesett páciensek távozása során a testükben különböző mértékű radioaktivitást visznek ki, mely indirekt kibocsátást jelent. A radioaktív hulladékok és a radioaktivitással szennyezett hulladékok általi kibocsátás közvetlen kibocsátást eredményez.

A cikk összefoglalja az indirekt kibocsátás és a direkt kibocsátás környezeti hatásait, a betegek elbocsátásának feltételeit, a feltételek teljesülését, figyelembe véve a betegek útját, a hulladékkezelést, valamint az engedélyezési eljárások során a hatósági követelményeket. Nagyon fontos paraméterek a pácienseknek beadott radiofarmakonok aktivitása, az alkalmazott izotópok típusa, sugárzási energiája, a keletkezett radioaktív hulladékok fajtája és mennyisége.

Munkámban megpróbáltam kapcsolatot teremteni a diagnosztikai és terápiás nukleáris medicina laboratóriumokban felhasznált radiofarmakonok típusa és aktivitása, a páciensek testében kivitt radioaktivitás által okozott közvetett kibocsátás, a keletkezett radioaktív és radioaktivitással szennyezett hulladékok közvetlen kibocsátása és környezeti hatásai között.

Kulcsszavak: közvetett és közvetlen kibocsátás, radioaktív hulladék, környezeti hatás

BEVEZETÉS

A nukleáris medicina laboratóriumok környezeti hatásai közé két fő kibocsátási típus tartozik.

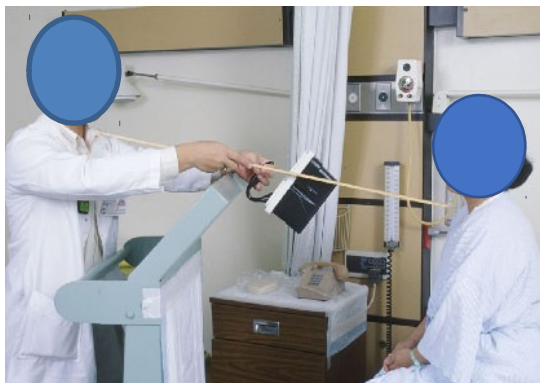
Közvetett kibocsátás: az aktív betegek, úgy az izotópdiagnosztikai vizsgálatok, mint az izotópterápiás kezelések utáni elbocsátása során, a beadott radioaktivitás egy részét intézményen kívülre a testükben kiviszik. Ebben az értelemben az izotópdiagnosztikai és izotóp terápiás tevékenység következtében indirekt radioaktív anyag kibocsátás történik, azonban a betegek távozáskor a testükben kivitt aktivitás kibocsátása térben és időben elkülönül egymástól.

Közvetlen kibocsátás: a radioaktív hulladékok, illetve radioaktivitással szennyezett szilárd, folyékony vagy légnemű hulladékokból származó kibocsátás.

Kutatásom célja az volt, hogy az OAH engedélyezési eljárásai alapján felfeltárjam, hogy a nukleáris medicina laborok környezeti hatásai milyen mértékű terhelést okoznak a környezetre nézve.

A BETEGEK ELBOCSÁTÁSÁNAK FELTÉTELEI

Az izotópdiagnosztikai vizsgálat és az izotópterápia után a 21/2018. (VII. 9.) EMMI rendelet az egészségügyi szolgáltatások nyújtása során ionizáló sugárzásnak nem munkaköri kötelezettségük keretében kitett személyek egészsége védelmének szabályairól szóló rendeletnek, vagy a mindenkor aktuális vonatkozó jogszabályoknak megfelelően be kell tartani az elbocsátási feltételeket. A 21/2018. (VII. 9.) EMMI rendelet alapján az alábbiak szerint kell eljárni: „24. § (1) Nyitott sugárforrásokkal végzett vizsgálatot vagy terápiát követően nem bocsátható el a beteg, amíg a radioaktív anyag a szervezetében olyan mértékű, hogy az várhatóan a környezetében tartózkodók 30 μSv -t meghaladó sugárterhelését okozhatja, vagy a teste középtengelyétől bárhol, 1 méter távolságban, erre alkalmas és hitelesített környezeti dózisegyenérték-teljesítménymérővel mért érték meghaladja a 25 $\mu\text{Sv/h-t}$.” Lásd 1. ábra.



1. ábra. Környezeti dózisegyenérték-teljesítmény mérése

ELBOCSÁTÁSI FELTÉTELEK TELJESÜLÉSE

Diagnosztikai eljárások során, a hagyományos nukleáris medicina vizsgálatok esetén, már a beadást követően, valamint az első vizeletürítés után, a Pozitron Emissziós Tomográfia (PET) vizsgálatok során, legtöbbször a vizsgálat végére (kb. 1,5 óra) teljesül az elbocsátási feltétel.

A Tc-99m-el jelzett radiofarmakonok a kiválasztással, elsősorban vizelettel ürülnek a szervezetből, de az aktivitás csökkenése, tekintve a rövid felezési időt (6 óra), legnagyobb részében a fizikai bomlásból származik. A beadott aktivitás kb. 1–2 %-a távozik a nukleáris medicina laborban a vizelettel. A beadás és a nukleáris medicina laboratóriumból történő távozás idejére 3 órát számolva, a beteg, a testében a beadott aktivitás kb. 69 %-át viszi

magával. Ennél a radioizotópnál azonban figyelembe kell venni a gyors fizikai felezést, továbbá, hogy a radioizotóp a különböző lágy szövetekben kötődik meg, ahol fizikailag bomlik le, így a radioaktív anyagnak az exkrétumokkal való teljes távozása, a beteg otthonában nem éri el a hazavitt aktivitás 1 %-át. Tehát a maximális beadott aktivitás esetén (800 MBq), a beteg otthonában az exkrétumokkal távozó aktivitás 5,52 MBq.

A felhasznált Tc-99m radioizotóp rövid felezési ideje miatt a környezeti felhalmozódása kizárható.

IZOTÓP TERÁPIÁS ELJÁRÁSOK

a) Radiojód terápia:

- Ambuláns kezelés (150 MBq – 550 MBq): a beadást követően minimum 2 óra várakozás az aktív váróban, majd az elbocsátási feltétel teljesülése után általános sugárvédelmi szabályokkal történő elbocsátás.
- Kórházi bent fekvő terápia (550 MBq – 5500 MBq): minimum 5 napig történő bent fekvés az izotópterápiás kórteremben, majd az elbocsátási feltétel teljesülése után szigorú sugárvédelmi szabályokkal történő elbocsátás.

Ambuláns radiojód terápia esetén a beadott aktivitás minimum 26 %-a a pajzsmirigyben halmozódik, és innen 8 napos fizikai felezési idővel és 80 napos biológiai felezési idővel ürül ki. Ez azt jelenti, hogy a pajzsmirigynél az aktivitás csökkenést elsősorban a fizikai felezés (8 nap) okozza, az aktivitás közel 74 %-a az exkrétumokkal távozik és ebből 30 % a nukleáris medicina laborban, míg a maradék 44 % a beteg otthonában. Tehát a maximálisan beadott aktivitás esetén (550 MBq) a beteg otthonában az exkrétumokkal távozó aktivitás 242 MBq.

Bent fekvő nagydózisú radiojód terápia során a betegek 5 napig tartózkodnak a terápiás kórteremben. Az első 1–3 nap alatt a beadott aktivitás zöme távozik a vizelettel.

A teljes bent tartózkodási idő alatt a vizelettel kiürülő aktivitás, ami a beadott aktivitás legalább 62 %-a, zárt dezaktiváló rendszerben kerül gyűjtésre, amelyből a bekerült radiojód lecsengéséig nem történik kibocsátás. A bent tartózkodás alatt a széklettel ürülő aktivitás a teljes aktivitás kb. 2 %-ának tekinthető, ezért a vizelettől elválasztott székletet nem gyűjtik. A beadott aktivitás kb. 74 %-a az exkrétumokkal távozik és ebből 64 % a bent fekvés során, míg a maradék 10 % a beteg otthonában. Tehát a 3700 MBq beadott aktivitás esetén a beteg otthonában az exkrétumokkal távozó aktivitás 370 MBq. Természetesen ez akkor igaz, ha a beteg pajzsmirigye megtartott. A felhasznált I-131 radioizotóp rövid (8 nap) fizikai felezési ideje miatt a környezeti felhalmozódása kizárható az ambuláns és a bent fekvő radiojód terápia esetén is.

- b) *Daganat terápia*: I-131 MIBG-el és Lu-177-el (3700 MBq – 11000 MBq) minimum 4–5 napig történő bent fekvés az izotópterápiás kórteremben, majd az elbocsátási feltétel teljesülése után szigorú sugárvédelmi szabályokkal történő elbocsátás.
- c) *Fájdalomcsillapító (palliatív) izotópterápia*: ambuláns kezelés, néhány óra (2–3 óra) aktív váróban történő várakozás után, az elbocsátási feltétel teljesülése mellett általános viselkedési és sugárhigiéniai szabályok betartásával történő elbocsátás.
- d) *Ízületi terápia*: ambuláns kezelés, esetleg kórházi bent fekvéssel. Térdízület kezelése esetén a közönséges kórteremben történő kórházi immobilizáció kötelező. A megfelelő immobilizációs idő eltelte után, az elbocsátási feltétel teljesülése mellett, általános viselkedési és sugárhigiéniai szabályok betartásával történő elbocsátás. Környezeti kihatás gyakorlatilag elhanyagolható.

Ambuláns és bent fekvő kezelés elbocsátott betegei részére egyaránt írásos sugárvédelmi tájékoztató szükséges.

1. táblázat. Leggyakrabban alkalmazott diagnosztikai célú radioizotópok és jellemzőik

Radioizotóp	Felezési idő	Energia γ (keV)	K_γ
Tc-99m	6 óra	140	$1,97 \times 10^{-5} \text{ mSvh}^{-1} \text{ MBq}^{-1} \text{ m}^2$
F-18	109,8 perc	511	$136,46 \text{ } \mu\text{Gyh}^{-1} \text{ GBq}^{-1} \text{ m}^2$

2. táblázat. Leggyakrabban alkalmazott izotópterápiás kezelésekre használt radioizotópok és jellemzőik

Radioizotóp	Felezési idő	Energia γ (keV)	Energia β (keV)	Energia α (keV)	K_γ ($\mu\text{Gyh}^{-1} \text{ GBq}^{-1} \text{ m}^2$)
I-131	8 nap	364	248–807	-	50,2
Ho-166	26,8 óra	81	184	-	-
Lu-177	6,6 nap	113; 208	490	-	4,7
Ra-223	11,4 nap	10-1270	445–492	5000–7500	0,06 $\mu\text{Svh}^{-1} \text{ MBq}^{-1} \text{ m}^2$
Sm-153	46,3 óra	103	max. 810	-	4,5
Y-90	64 óra	1730	2250	-	0,45

RADIOAKTÍV HULLADÉK A NUKLEÁRIS MEDICINÁBAN

Nyitott radioaktív készítmények izotópdiagnosztikai és izotópterápiás felhasználása speciális esetben radioaktív hulladék, illetve általában radioaktivitással szennyezett hulladék keletkezésével jár.

A radioaktív hulladék esetében a szennyező radioizotóp aktivitása is, és specifikus aktivitás koncentrációja is meghaladja a vonatkozó mentességi szintet, mely lehet szilárd, folyékony és légnemű.

A nukleáris medicinában diagnosztikai vagy terápiás célra rutinszerűen használt radioizotópok olyan rövid felezési időjűek (< 65 nap), hogy azokat elegendő lebomlásig tárolni. Olyan radioaktív hulladék, amit ki kellene bocsátani, nem keletkezik.

Radioaktív hulladékok típusai

a) Szilárd hulladék:

- használt izotópgenerátorok;
- kalibráló, képmínőség ellenőrző/javító zárt sugárforrások;
- üres ampullák, használt injekciós tűk, fecskendők, törölő/felitató papírvatta;
- szűrőpapírok, vatták, védőkesztyűk, szennyeződött ruhaneműk;
- bent fekvő terápiás beteg által használt tárgyak.

b) Folyékony hulladék:

- fel nem használt radioaktív folyadékok;
- jódterápiás betegek vizelete;
- folyadékszintillációs oldatok (in vitro izotópdiagnosztika);

c) Gáznemű hulladék:

- tüdőventillációs vizsgálatok során keletkezik;
 - elszívásos védelem, párolgásra hajlamos készítmények kezelésénél;
 - betegek által kilehelt levegő (kórházi fekvőbeteg jódterápiánál).
- d) Biológiai hulladék:
- vérrel, egyéb testnedvvel szennyezett hulladék;
 - izotópos műtétek során keletkező hulladék;
 - állatkísérletek során keletkező hulladék.
- e) Zárt radioaktív sugárforrások, amelyeket kalibrációra, képminőség ellenőrzésre, illetve javításra használnak, valamint az anatómiai jelölőceruzák. A zárt sugárforrásokat radioaktív hulladékként Püspökszilágyban el kell temettetni (végleges elhelyezés). Lásd 2. ábra. Ritkábban újra tokozás és újra felhasználás történik. Egyes gyártmányoknál a gyártó a sugárforrást cseréli és elszállítja.



2. ábra. Zárt sugárforrások

RADIOAKTÍV HULLADÉKOK KEZELÉSE

A napközben összegyűjtött radioaktív hulladékot, valamint a használt izotópgenerátort a radioaktív hulladéktárolóban kell elhelyezni. A hulladéktárolóban lévő anyagokon fel kell tüntetni a hulladék jellegét, az izotóp fajtáját, a benne lévő aktivitás becsült értékét, az elhelyezés és a várható lebomlás dátumát. A biológiai hulladékot a többi hulladéktól külön kell gyűjteni. Biológiai hulladékot 48 órán túl az aktív hulladéktárolóban elhelyezett hűtőszekrényben kell tárolni.



3. ábra. A meglelaborban a radiofarmakonok beadásra történő előkészítésénél kis mennyiségű radioaktív hulladék keletkezik.



4. ábra. Napközben keletkező radioaktív hulladék gyűjtésére szolgáló tárolók, radioaktív hulladéktároló

RADIOAKTIVITÁSSAL SZENNYEZETT HULLADÉK KIBOCSÁTÁSA

Kibocsátás: tekintettel arra, hogy mind az izotópdiagnosztikában, mind az izotópterápiában alkalmazott radioizotópok felezési ideje 65 napnál rövidebb, a hulladékot „lecsengésig” kell tárolni.

„Lecsengésig tárolás” legalább 10 felezési ideig történő tárolást jelent.

Kalibráló zárt sugárforrások: felezési idejük jellemzően 65 napnál hosszabb. A kalibráló zárt sugárforrásokat Püspökszilágyban el kell temettetni.

Izotóp generátor: lecsengésig ($> 1 \text{ MBq}$) történő tárolás: minimum 40 nap.

ÖSSZEFOGLALÁS ÉS KÖVETKEZTETÉS

Az aktív betegek által kivitt radioaktivitásnak, tehát a közvetett kibocsátásnak is vannak környezeti hatásai, amik elsősorban a közvetlen környezetet, leginkább a családtagokat, másodsorban a külső környezetet érintik.

Ugyanakkor a betegek távozáskor a testükben kivitt aktivitás kibocsátása térben és időben elkülönül egymástól.

Megállapíthatjuk tehát, hogy a környezeti hatások mérsékeltek, a radioizotópok felhalmozódása kizárható úgy a diagnosztikus, mint a terápiás eljárások alkalmazása során.

Fontos tényező a kihatások további csökkentése érdekében, hogy a betegeket részletes sugárvédelmi tájékoztatóval bocsátják el, melyben a leírt sugárhigiéniai szabályok betartására hívják fel a figyelmüket.

Továbbá megállapíthatjuk, hogy a radioaktív hulladékok közvetlen kibocsátásával a nukleáris medicina laborok a környezetet nem terhelik, köszönhetően annak, hogy radioaktív

hulladék csak kórházi fekvőbeteg jódtérápia során keletkezik, ahol az összegyűjtött radioaktív vizet lecsengésig tárolják.

Radioizotópokkal kismértékben szennyezett hulladékok kibocsátására ugyanakkor sor kerül (pl. aktív beteg WC tartalma). Köszönhetően az alkalmazott diagnosztikai és terápiás radiofarmakonok rövid felezési idejének, a környezet ebből származó terhelése egyrészt nem jelentős és átmeneti, másrészt a radioaktív szennyeződés nem képes felhalmozódni.

IRODALOM

- [1] 2/2022. (IV. 29.) OAH rendelet az ionizáló sugárzás elleni védelemről és a kapcsolódó engedélyezési, jelentési és ellenőrzési rendszerről
- [2] 21/2018. (VII. 09.) EMMI rendelet az egészségügyi szolgáltatások nyújtása során ionizáló sugárzásnak nem munkaköri kötelezettségük keretében kitett személyek egészsége védelmének szabályairól
- [3] MSZ 62-7:2017. Ionizáló sugárzás elleni védelem. 7. rész: Sugárvédelem nyitott radioaktív anyagok alkalmazásakor
- [4] IAEA: International Atomic Energy Agency: Release of Patients after Radionuclide Therapy. SRS No. 63. IAEA Vienna, 2009
- [5] IAEA: International Atomic Energy Agency: Nuclear Medicine Physics. IAEA Vienna, 2014
- [6] Egészségügyi Minisztérium szakmai irányelve: a csontáttétek nyitott radioaktív izotópokkal történő kezeléséről. Nukleáris Medicina Szakmai Kollégium. Egészségügyi Közlöny, 2006. év 5. szám
- [7] OSSKI Módszertani Útmutató: Izotópos Munkavédelmi Szabályzat. Budapest, 2011
- [8] Egészségügyi Minisztérium szakmai irányelve: pajzsmirigybetegek kezeléséről ¹³¹I-jód izotóppal. Nukleáris Medicina Szakmai Kollégium. Egészségügyi Közlöny, 2008. év 3. szám
- [9] Nuclide Safety Data Sheet Fluorine – 18, www.nchps.org

A SZEMÉLYI DOZIMETRIA FEJLESZTÉSE AZ IZOTÓP INTÉZET KFT.-NÉL

Kovács Bence^{*1}, Szőnyi-Pákai Renáta¹, Gáspár Lilla² és Elek Richárd³

¹Izotóp Intézet Kft.

²Budapest Főváros Kormányhivatala, Metrológiai és Műszaki Felügyeleti Főosztály

³Nemzeti Népegészségügyi és Gyógyszerészeti Központ

*kovacs@izotop.hu

A kézirat beérkezett: 2024.03.16.

Közlésre elfogadva: 2024.05.29.

The Institute of Isotopes Ltd. has become Hungary's most important research, development and manufacturing centre for radioisotope applications over the past 30 years. The company provides its employees with high level of protection in hazardous jobs and uses its own personal dosimetry system in addition to the official personal dosimeters to be worn by them.

In recent years, the company has reviewed its thermoluminescent (TLD) whole-body dosimetry system in use and has decided to introduce new technology to monitor its staff. The accepted offer for the company's tender in 2022–2023 was Canberra-Packard Ltd. with the German-developed dosimetry system from Dosimetrics, BeOSL.

In our presentation we will introduce the BeOSL system in more detail, covering the optically stimulated luminescence technology, the principle of operation of the system, and its advantages and disadvantages compared to other systems. We will also report on our daily experience as users, as well as on its use and the results of an ad-hoc organised intercomparison exercise.

Keywords: BeOSL, dosimetry, development

Az Izotóp Intézet Kft. az elmúlt 30 évben Magyarország legfontosabb radioizotóp alkalmazásokkal kapcsolatos kutató, fejlesztő és gyártó központjává vált. A Kft. sugárveszélyes munkakörben foglalkoztatott munkavállalóit megfelelő minőségű védelemben részesíti, és a számukra biztosított hatósági személyi dózismérők mellett, saját személyi dozimetriai rendszert is használ.

Az elmúlt évek folyamán az eddig használt termolumineszcens (TLD) egésztest dózismérő rendszert felülvizsgálta és a személyi dozimetria fejlesztését tűzte ki célul és döntött úgy, hogy újabb technológiát vezet be a személyzet ellenőrzésére. 2022–2023-ban a Kft. által kiírt pályázat győztese, a Canberra-Packard Kft. és a német Dosimetrics BeOSL dozimetriai rendszere volt.

Jelen publikációban a BeOSL rendszert kívánjuk részletesebben bemutatni, kitérve az optikailag stimulált lumineszcens technológiára, a rendszer működési elvére, valamint előnyeire és hátrányaira más rendszerekkel szemben. Felhasználókként a mindennapi tapasztalatainkról, valamint a használatáról és egy ad-hoc szervezett összemérésben kapott eredményekről is beszámolunk.

Kulcsszavak: BeOSL, dozimetria, fejlesztés

BEVEZETÉS

Az Izotóp Intézet Kft. (továbbiakban Kft.) kb. 80 főt foglalkoztat „A” besorolású sugárveszélyes munkakörben, akik számára a hatósági személyi dózismérők mellett saját dozimétert is biztosít, illetve kb. 70 főt, akik a munkájuk során nem szükségszerűen, de kapcsolatba kerülhetnek nagyaktivitású fotonsugárzó forrásokkal. Annak érdekében, hogy a

Kft. demonstrálja, hogy a munkavállalóit megfelelő minőségű védelemben részesíti, saját személyi dozimetriai rendszert is használ. Ehhez önálló dozimetriai rendszer alkalmazása elengedhetetlen az előbbiektől, és a Kft. sokrétű tevékenysége miatt, mely magába foglalja a radiógyógyszer-gyártást, a sugárforrások gyártását és tokozását, újrahasznosítását, az ipari nagybesugárzók (> 370 TBq) töltetcsereit stb. A Kft. vezetése 2022-ben felülvizsgálta a személyi dozimetria részét képező termolumineszcens (TLD) egésztest dózismérő rendszert. A felülvizsgálat az 1990-es években üzembe helyezett TLD rendszer elavulása, valamint a kiértékelési munkafolyamatok időigényessége és körülményessége miatt vált szükségessé. Ezeknek a problémáknak a fényében Lakatos Mihály, a Kft. ügyvezető igazgatója jóváhagyásával az Izotóp Intézet Kft. pályázatot írt ki a személyi dozimetriai rendszer fejlesztésére.

A 2023-as év elején a győztes pályázó a Canberra-Packard Kft. és a német Dosimetrics BeOSL dozimetriai rendszere volt.

A rendszer telepítése és a hozzá tartozó oktatás 2023. júliusában történt meg. A 3 napos oktatáson a Kft. sugárvédelmi szolgálatának munkatársai mellett vendégként részt vett Elek Richárd a Nemzeti Népegészségügyi és Gyógyszerészeti Központtól, Taba Gabriella a Semmelweis Egyetem Sugárvédelmi Szolgálatának vezetője, Csizmadia László az MVM Paksi Atomerőmű Zrt. munkatársa és természetesen a Canberra-Packard Kft. munkatársai. Az oktató Dr. Reiner Eßer volt, a Dosimetrics Kft. szakértője, aki fontos szerepet töltött be a BeOSL rendszer kifejlesztésében és talán a legnagyobb tapasztalattal rendelkezik a rendszerről, mellyel kb. félmillió dozimétert értékelnek ki havonta a Helmholtz Zentrum München intézetében, Németországban. A fejlesztés minőségéről sokat elárul, hogy a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség is alkalmazza bizonyos dozimetriai feladatai esetén.

A telepítéssel egybekötött oktatás keretein belül megismerhettük a rendszer működéséhez szükséges alapokat, a használatát és minden olyan apró részletet, mely elengedhetetlen ahhoz, hogy a felhasználó könnyedén és egyszerűen tudja alkalmazni a BeOSL rendszert.

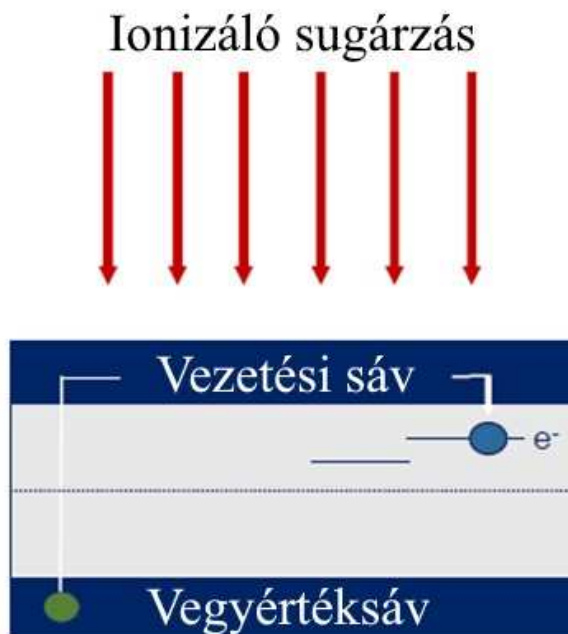
AZ OSL MŰKÖDÉSI ELVE



1. ábra. Sáv-modell

Egy szigetelő alapállapota:

- a vegyértéksáv elektronokkal telített,
- a vezetési sáv üres;
- csapdanívoknak nevezzük a szigetelőben lévő szennyeződések és hibák miatt a két sáv között helyenként speciális energiaállapotokat.

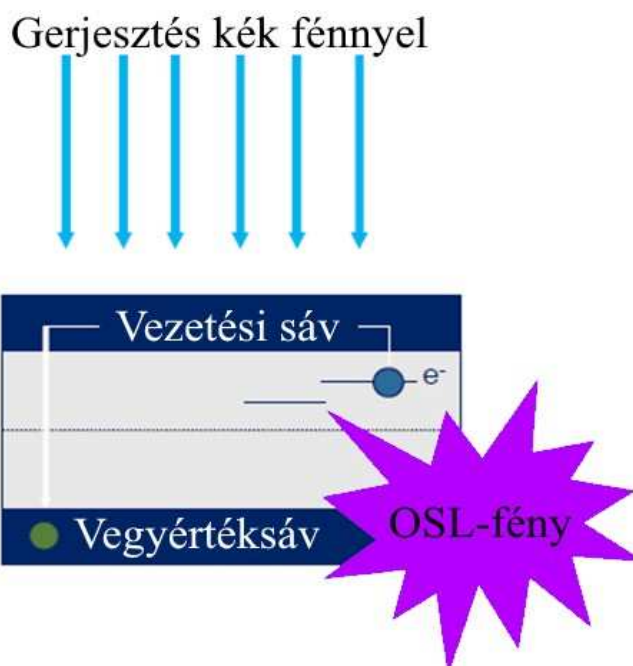


2. ábra. Detektor gerjesztés ionizáló sugárzással

A sugárzás energiájának elnyelése:

- az elektronok a vegyértéksávból a vezetősávba gerjesztődnek;
- ezek az elektronok a vegyértéksávban lévő lyukakkal rekombinálódhatnak;
- majd-
- csapdázódnak a vegyértéksáv és a vezetési sáv közötti lokalizált energiaállapotokban (a csapdanívókon).

A csapdanívók sűrű elhelyezkedése miatta szigetelőben nagy mennyiségű elektron nem tud legerjesztődni (fellépni a vezetési sávba, majd le a vegyértéksávba), ezért hosszú távon a csapdákból marad, külső gerjesztő hatás nélkül.

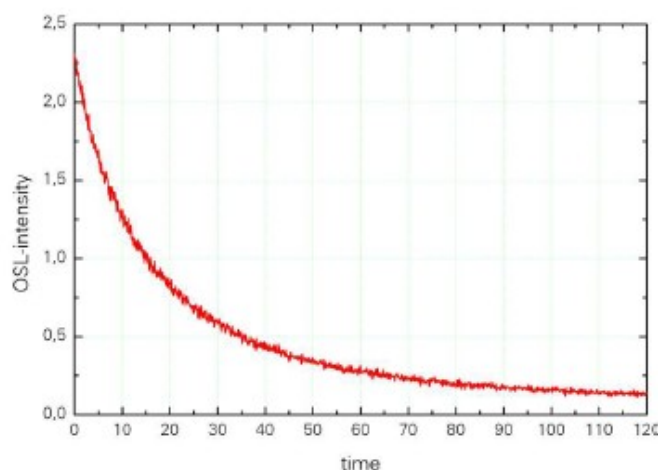


3. ábra. Detektor optikai stimulációja

A csapdák kiürítéséhez a csapdába esett elektronok legerjesztésére van szükség:

- ez kék fénnel történő stimulálással történik (alacsony hullámhossz, nagy energia a látható fény tartományában, ~455 nm);
- vezetősávba jutó gerjesztett elektronok ultraibolya (nagyobb hullámhosszúságú, alacsonyabb energiájú) fény kibocsátásával rekombinálnak a vegyértéksávban lévő lyukakkal, ~350 nm).

Ez a lumineszcencia jelensége.



4. ábra. Bomlási görbe

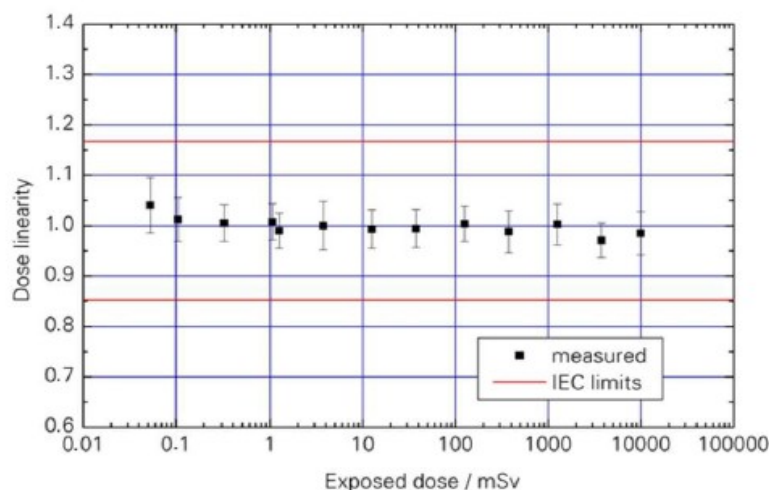
A BeOSL DOZIMETRIAI RENDSZER BEMUTATÁSA

A BeOSL rendszer, ellenben a TLD rendszerekkel, nem a termolumineszcencia, hanem az optikailag stimulált lumineszcencia (OSL) elve alapján működik. Esetünkben a detektor anyaga berillium-oxid, mely anyagot az elektronikai eszközökben széles körben használják jó elektromos szigetelő-, és kiváló hővezetőképessége miatt. Viszonylag olcsón előállítható. Szinterezett kerámiaként érzéketlen a mechanikai vagy környezeti hatásokkal szemben, a porított vagy hasonló anyagi minőségű berilliumvegyületekhez képest e kémiai-fizikai forma nem mérgező, így a kezelése biztonságos. Közel szövetekvivalens ($Z_{\text{eff}}=7,13$). Ezzel a tulajdonságával lehetőség van arra, hogy akár egyetlen detektor a megfelelő szűrő mögött biztosítsa a széles energiatartományú, pontos személyi dózisegyenérték [Hp(10)] mérésének lehetőségét.

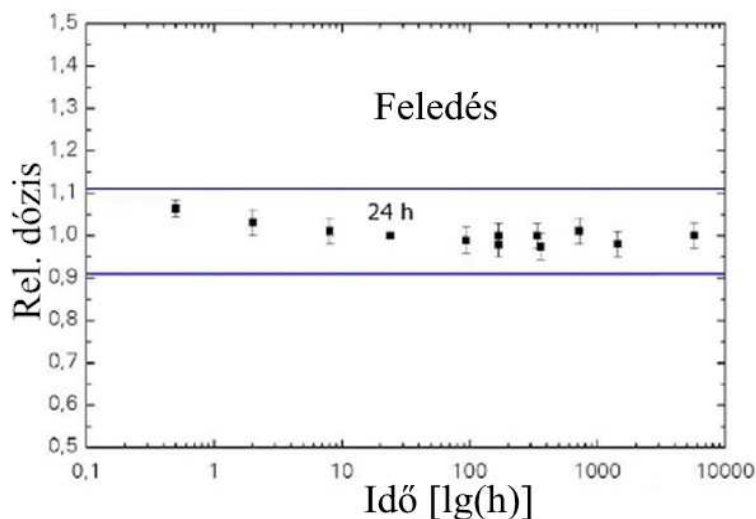
A BeOSL detektorok tulajdonságai

Linearitása kiváló.

A besugárzási dózissal arányos jelet a BeO csak jelentéktelen mértékben „feledi”, gyakorlatilag így megtartja az egyszeri besugárzásból adódó dózist. Ennek jelentősége, hogy két munkavállaló esetén, akik közül az egyik az ellenőrzési időszak elején, a másik pedig az ellenőrzési időszak végén azonos besugárzást szenved el, dozimétereiken lényegében azonos eredményeket mérhetnek.



5. ábra. Linearitás



6. ábra. Feledés

E tulajdonságok lehetővé teszik, hogy a Dosimetrics minőségellenőrző dozimétereket kínáljon fel (ún. „QA flexKits”) a kiolvasó kalibrációjára. Ekkor természetesen a háttérsugárzástól óvni kell a dozimétereket, de így is hosszabb ideig felhasználhatóak.

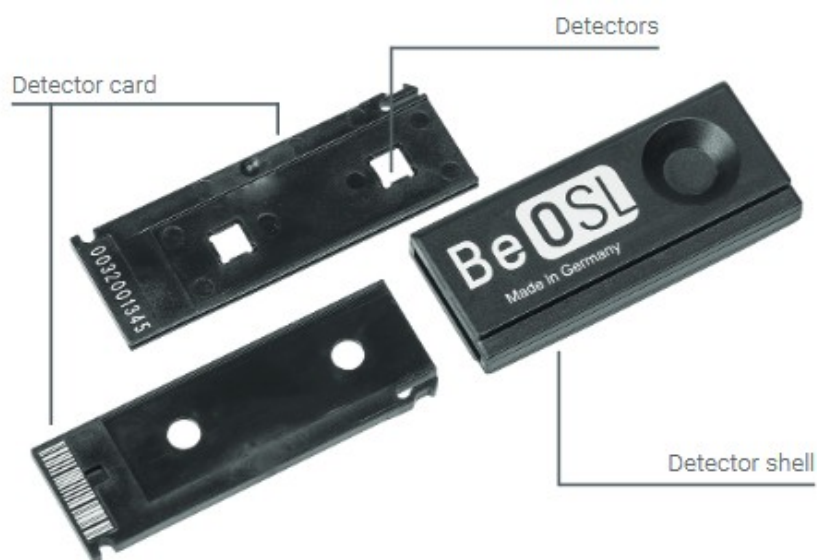
A dozimetriai rendszer részei

A rendszer elvi működésének megismerése után ismertetjük a rendszer felépítését, részegységeit és azok működését.

A rendszer fő elemei, amelyek szükségesek a használathoz, egy számítógép és perifériái (monitor, billentyűzet stb.), a BeOSL Reader, ami maga a kiolvasó készülék, a BeOSL Eraser, amely pedig a doziméterek nullázó törlésére szolgál. A beüzemelés napján a Dosimetrics kollégái szállították le és helyezték üzembe a Canberra-Packard Kft. Magyarország munkatársainak közreműködésével. Miután a rendszer egyes egységeit csatlakoztatták és megismerkedtünk a működésének elvi alapjaival, folytattuk a tanulást a rendszer fizikai részeinek megismerésével és használatával.



7. ábra. A BeOSL rendszer részei



8. ábra. BeOSL doziméterek

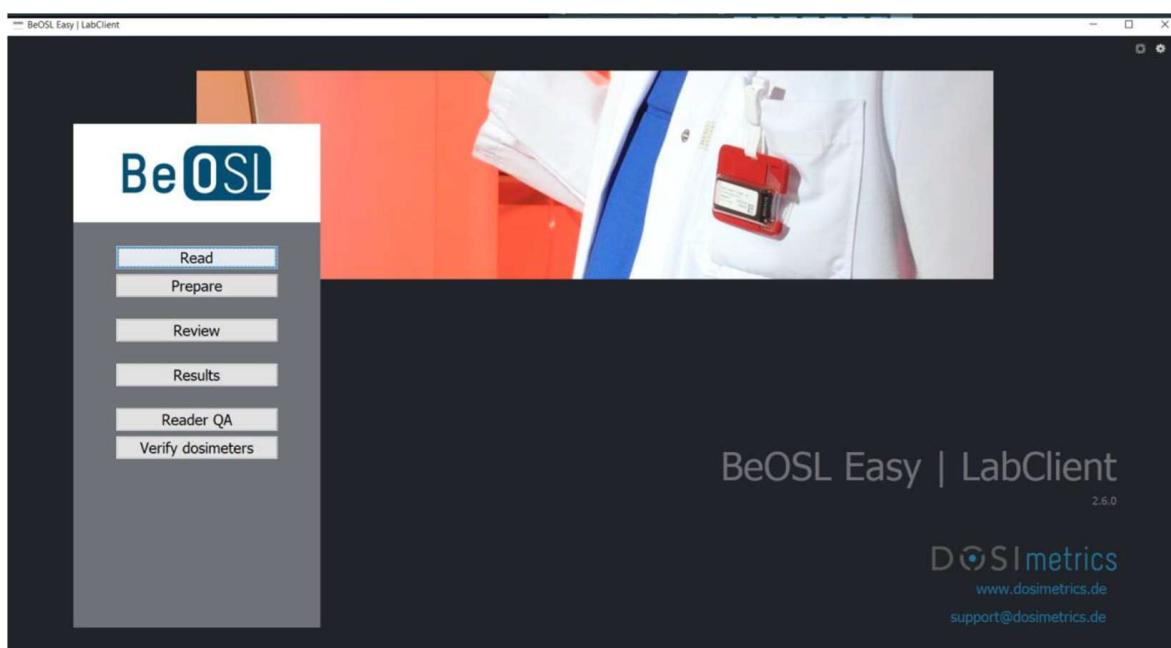
BeOSL egésztestdoziméterek

- 2 és 4 elemű változat, melyből az előbbit szereztük be, összesen 400 darab doziméterrel;
- Mindkét változat $H_p(10)$ és $H_p(0,07)$ mérésére egyaránt alkalmas a német PTB típusvizsgálati tanúsítványa szerint;
- Egyedi kalibrálási tényező minden egyes doziméter minden egyes eleméhez;
- A dozimétereken lévő egyedi vonalkóddal könnyen azonosítható;
- Névleges fotondozimetriai méréstartomány: $0,1 \text{ mSv} \leq H_p(10) \leq 10 \text{ Sv}$;
- Névleges energia- és szögfüggés: $16 \text{ keV} \leq E_{ph} \leq 7 \text{ MeV}$; $0^\circ \leq \alpha \leq \pm 60^\circ$;

- Az egyes doziméterek azonosítása nem csak vonalkóddal, hanem ún. RFID rádiófrekvenciás úton is lehetséges, illetve ezzel a kiegészítővel arra is lehetőség van, hogy a biztonsági ellenőrző kapuk észleljék a dozimétereket (így elkerülhető, hogy kimossák azokat).

A LabClient szoftver

A BeOSL rendszer fő kezelőfelülete a LabClient szoftver, mely vezérli a rendszer elemeit. A felhasználói felület felhasználóbarát, érthető utasításokkal ellátott program, aminél egyszerűen, rutinszerűen lehet dolgozni. A szoftver természetesen lehetőséget biztosít a doziméterek kiolvasására, használatra előkészítésére (azaz nullázásra és ellenőrző nullázásra), a kiolvasó berendezés kalibrációjára, illetve az épp aktuális minőségellenőrzést is módunk van elvégezni erről a kezelőfelületről. Fontos kiemelni, hogy a szoftver által előállított eredmények és a doziméterek adatai, eredményei semmilyen körülmények között nem módosíthatóak vagyis nem „piszkálható” meg, mert digitális aláírással hoz létre minden eredményfájlt a rendszer és rögzít minden rekordot az adatbázisban.



9. ábra. A LabClient szoftver

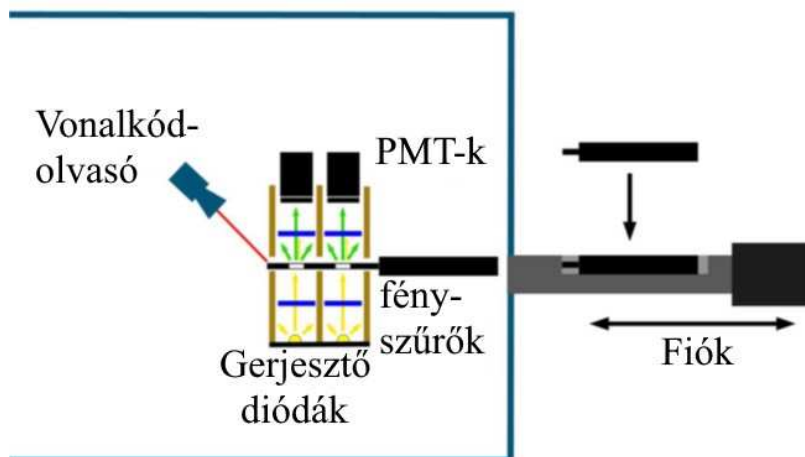
A BeOSL READER MŰKÖDÉSE

A kiolvasó egy nagyon egyszerű, robosztus felépítésű dobozban, lényegében az OSL működési elve szerint végzi a feladatát. A dozimétereket a fiókba mart üregbe kell irányhelyesen belehelyezni – másként nem is lehet – s ezután a berendezés behúzza a fiókot. A doziméter belsejében található műanyag alaplemezt látták el vonalkóddal, amely a dozimétert azonosítja.

A műanyag alaplemezbe sajtolt BeO pasztillák ezután egy trükkös úton kerülnek kiértékelésre. Először egy rövid impulzusidejű (néhány ms) villanással ellenőrzi a rendszer azt, hogy mekkora fotonjel érkezik a fotoelektron-sokszorozóra (PMT), vagyis nagy dózisra kellene-e számítani a doziméterből, majd a kiolvasó fényjel szintjét, azaz a dióda áramát igazítja a kiolvasandó jelhez. Ezután 5 felvillanással kiolvassa a fotonjelet és az eredmények mediánja alapján adja meg a dozimetriai eredményt, figyelembe véve a doziméter érzékenységét.

A normál munkafolyamat szerint a dozimétert ki kell olvasni, nullázni, majd ellenőrizni, hogy sikerült-e a nullázás. Ha olyan jelet érzékelnénk, ami miatt a doziméter jelzését ismét

ellenőrizni kellene (pl. 20 mSv felett), akkor lehetőség van a törlés előtt egy ismételt ellenőrzésre.



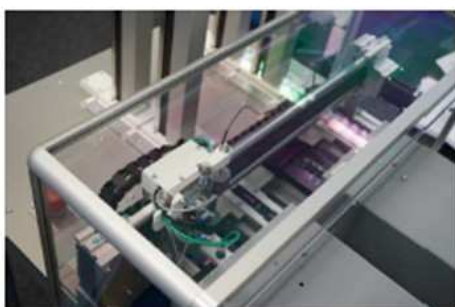
10. ábra. A Reader működése

A BeOSL RENDSZEREK KÜLÖNFÉLE KIÉPÍTÉSEI

A BeOSL dozimetriai rendszerből több kiépítés is elérhető. A típusválasztást a legjobban befolyásoló tényező, hogy hány főnél szükséges a rendszeres dozimetriai monitorozás, ellenőrzés. A Kft. számára, tekintve a sugárveszélyes munkakörben dolgozó munkavállalók számát, elegendő volt az alap, manuális rendszert beszerezni.

Attól függően, hogy mekkora területen szükséges a monitorozás, van lehetőség akár robotizált rendszerre is.

"Táras" automatizáció



Robotcellás asztal



11. ábra. A BeOSL rendszerek különböző kiépítései

A BeOSL RENDSZERÜNK VISSZAVEZETETTSÉGÉNEK BIZTOSÍTÁSA

A jelenlegi dozimetriai rendszerünk kalibrációját alkalmanként végezzük és egyelőre nem tervezzük komolyabb minőségirányítási rendszer bevezetését.

Az oktatáson részt vevő kollégákkal jövőbeli terveink között szerepel egy átfogó összemérés, melyben az országban lévő, a különféle intézmények által alkalmazott dozimétereket kívánjuk ellenőrizni.

A hivatalos összemérés előtt kíváncsiak voltunk, hogy a jelenlegi állapotban a BeOSL doziméterek hogyan viselkednek, így egy ad-hoc besugárzást terveztünk elsődleges feladatnak. A kivitelezéséhez segítséget kértünk a Budapest Főváros Kormányhivatala,

Sugárfizikai és Kémiai Mérések Osztályától (továbbiakban BFKH), ahol Szűcs László és Gáspár Lilla volt segítségünkre.

2024. februárjában 20 db BeOSL dozimétert sugaraztak be különféle dózissal. Ennek eredményeit a 14. ábra és az 1. táblázat ismerteti. Az eredmények rendkívül meggyőzőek.

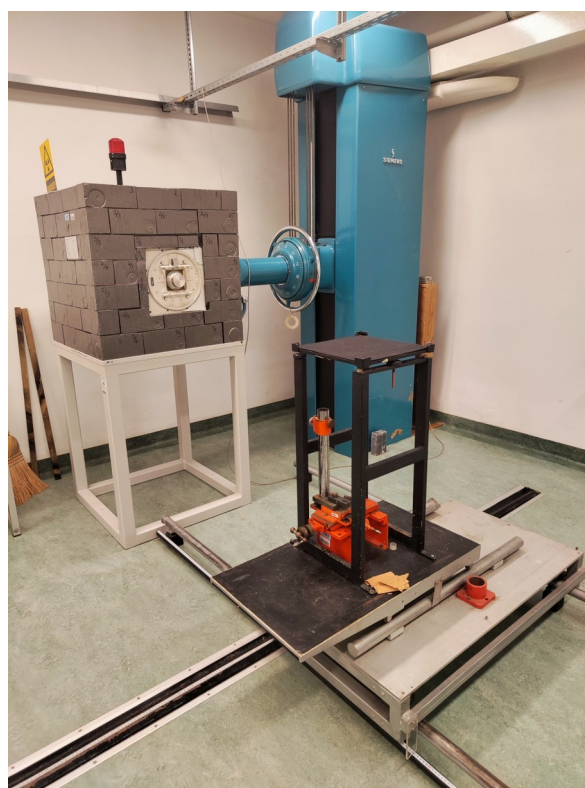
A BESUGÁRZÁS

A BFKH tartja fent a levegőben közölt és a vízben elnyelt dózis országos etalonját (ET-18). Az alkalmazott referenciaértékek az országos etalonra visszavezethetők. A passzív dózismérők besugárzásához két sugárútváltót használtunk, egy Gammatron I. típusú besugárzót ^{60}Co sugárforrással (névleges aktivitás 128,16 TBq, referencia idő 2019.01.01.) és egy Műszerhitelesítő gamma-besugárzót ^{137}Cs sugárforrással (névleges aktivitás 5,9 TBq, referencia idő 2002.12.19.). A besugárzás az ISO 4037-3 szabványban leírtak szerint, az ott leírt víz egésztest fantomon történt.

Dózis(egyenérték) besugárzás esetén a referencia dózisértéket számítással kapjuk, amihez a közölt dózis(egyenérték)-teljesítményt a mérés időtartamával kell szorozni. Az aktuális referencia közölt dózisteljesítmény (kerma) értékeket a diszkrét pályaadatokra illesztett függvény segítségével határoztuk meg. A sugárforrás sugárzási terének (sugárkúp) szimmetria tengelye merőleges a dózismérő homloklapjára, és a felületet a detektor helyén (jelölt referencia pont) dőfi. A referencia sík a személyi dózismérő vastagságának felező síkja. Az alkalmazott nyaláb kúpjának az átmérője a dózismérők pozíciójában nagyobb volt, mint a vízfantom mérete.



12. ábra. Műszerhitelesítő Gamma besugárzó



13. ábra. Gammatron I.

EREDMÉNYEK

1. táblázat. A doziméterek kiértékelésének eredményei

Besugárzás	Doziméterek (sorszám)	mért/ref.	Mért érték
1. 2,0 mSv	1.	1,05	2,10
	2.	1,02	2,04
2. 1,0 mSv	3.	1,04	1,04
	4.	1,05	1,05
3. 3,0 mSv	5.	1,03	3,09
	6.	1,05	3,16
4. 1016 mSv	7.	0,88	897,00
	8.	0,98	995,00
5. 0,50 mSv	9.	1,04	0,52
	10.	1,05	0,52
6. 0,71 mSv	11.	1,02	0,72
	12.	1,07	0,76
7. 0,40 mSv	13.	1,05	0,42
	14.	1,05	0,43
8. 100,1 mSv	15.	1,03	103,00
	16.	1,04	104,00
9. 6,01 mSv	17.	1,07	6,45
	18.	1,03	6,19
10. 11,01 mSv	19.	1,02	11,20
	20.	1,03	11,30

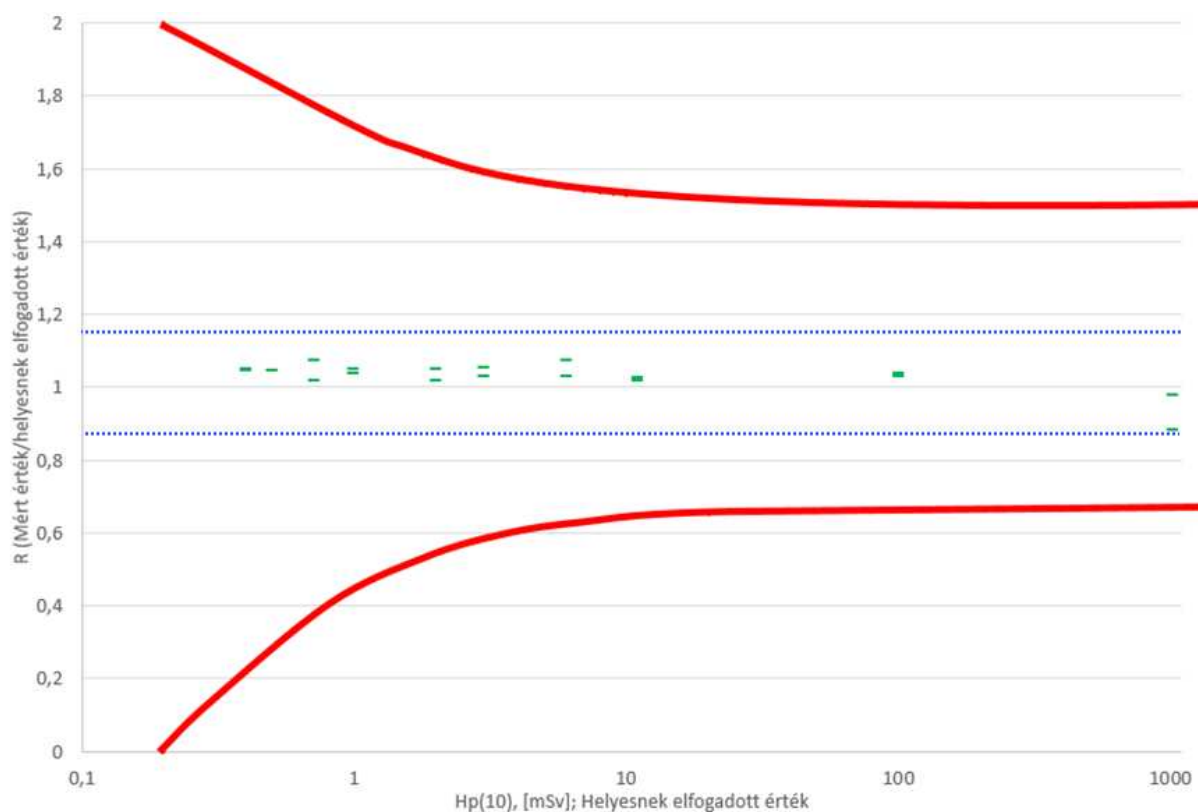
Egésztest dózismérőknél a hitelesítés feltétele, hogy a vizsgált dózismérők referencia értékre vonatkoztatott eltérése a -13% – +15% tartományban legyen, amennyiben ismert sugárminőségű (pl. S-Cs-137) fotonsugárzás érte azokat, 0°-os besugárzással. Ezt a 14. ábrán szaggatott kék vonal jelöli.

Az ISO 4037-3 szabványban leírtak szerint, az ott részletezett hasábfantomon történt az egésztest doziméterek besugárzása. A kiértékelés előtt nem volt ismert számunkra, hogy az egyes dozimétereket milyen szögben és fotonenergián sugarazzák be, ezért a kiértékelésükhöz az ISO 14146:2000 szabvány előírásai szerinti elfogadási kritériumot alkalmaztuk, de megfeleltek volna egyébként a fenti kritériumnak is, vagyis sikerrel vettek volna egy hitelesítést is. Az ún. trombitagörbe az alábbi képlettel határozható meg:

$$\frac{1}{F} \left(1 - \frac{2H_0}{H_0 + H_c} \right) \leq R \leq F \left(1 + \frac{H_0}{2H_0 + H_c} \right),$$

ahol F , H_0 és H_c a 14146:2000 szabványban megadott paraméterek, rendre 1,5; 0,2 és 1,0 paraméterekkel. A 14. ábrán ezt piros színnel tüntettük fel.

Amennyiben a doziméter által adott mérési eredmény a helyesnek elfogadott (BFKH általi besugárzási dózis) értéktől nem tér el jelentősen, azaz nem esik a trombitagörbén kívüli pontok halmazába, úgy a dózismérő alkalmazható személyi dozimetria céljára.



14. ábra. Trombitagörbe

Annak ellenére, hogy a rendszert nem típusvizsgáltattuk, illetve átfogó minőségirányítási rendszert nem vezettünk be, az eredmények alapján megállapítható, hogy remekül megállja a helyét a Kft. új dozimetriai rendszere.

KÖVETKEZTETÉSEK

Bár még csak most ismerkedünk az OSL technológiával, a BeOSL rendszerrel és egyelőre nem tettünk komolyabb intézkedéseket arra, hogy átfogó minőségellenőrzési programot vezessünk be, az eddigi eredményeink biztatóak.

IRODALOM

- [1] Dosimetrics BeOSL LabClient User Manual
- [2] Dosimetrics BeOSL Manual

Készült a SOMOS Alapítvány támogatásával

BIZONYTALANSÁGOK ÉRTÉKELÉSE ÉS KEZELÉSE A SUGÁRVÉDELMI KÖRNYEZETELLENŐRZÉSBEN

Jakab Dorottya*, Pázmándi Tamás, Zagyvai Péter

HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpont, 1121 Budapest, Konkoly-Thege Miklós út 29-33.

*jakab.dora@ek.hun-ren.hu

A kézirat beérkezett: 2024.03.27.

Közlésre elfogadva: 2024.05.29.

The primary objective of environmental radiation monitoring is to monitor the ambient radiation levels (dose rates) and radionuclide concentrations in variant environmental constituents. This includes determining long-term trends as well as promptly detecting short-term and rapid changes in their value. However, these quantities exhibit inherent spatial and temporal variability and heterogeneity, which may introduce significant errors and uncertainties into measurement results. To enhance the reliability of environmental radiation monitoring, improve the measurement capabilities, and facilitate appropriate interpretation and utilization of monitoring data, extensive research has been conducted on assessing and treating uncertainties in environmental radiation monitoring. These studies have focused on identifying and quantifying the key sources of uncertainty in environmental measurements. Additionally, the advantageous and disadvantageous features of different procedures applicable in measurement evaluation have been examined, along with the limitations of their applicability in various environmental measurement problems. Furthermore, solutions and methods have been proposed to support the implementation of reliable and comprehensive measurement evaluation in routine practice, leading to the definition of an improved measurement evaluation procedure.

Keywords: measurement evaluation, measurement uncertainty, detection limit, law of propagation of uncertainties, propagation of distributions, Monte Carlo method, uncertainty contributions

A sugárvédelmi környezetellenőrzés (környezeti monitorozás) elsődleges feladata a környezeti sugárzási szintek és a különböző környezeti elemek radionuklid-koncentrációjának nyomon követése, ideértve az ezekben jelentkező hosszútávú trendek megállapítását, illetve rövid idejű és gyors változások detektálását. Ezen mennyiségeket azonban eredendő térbeli-időbeli változékonyság és heterogenitás jellemzi, potenciálisan jelentős hibákkal és bizonytalanságokkal terhelve a mérési eredményt. A sugárvédelmi környezetellenőrzés megbízhatóságának növelése, a mérőrendszerek teljesítményének javítása és a monitoring tevékenységből nyert adatok megfelelő értelmezésének és felhasználásának támogatása érdekében átfogó kutatás került végrehajtásra a környezeti monitorozásban jelentkező bizonytalanságok értékelésére és kezelésére vonatkozóan. A vizsgálatok egyfelől a környezeti mérések legfőbb bizonytalansági forrásainak azonosítására és számszerűsítésére vonatkoztak. Emellett megállapításra kerültek a mérésikiértékelésben használható különböző eljárások előnyei és hátrányai, továbbá alkalmazhatósági korlátaik jelentkezése különböző környezeti mérési problémákban. Ezeken felül a megbízható és teljeskörű mérésikiértékelés rutin gyakorlatban való végrehajtását támogató megoldások és egy továbbfejlesztett mérésikiértékelési eljárásrend került kidolgozásra.

Kulcsszavak: mérésikiértékelés, mérési bizonytalanság, kimutatási határ, bizonytalanságterjedési szabály, valószínűség-eloszlások terjedése, Monte Carlo módszer, bizonytalansági hozzájárulások

BEVEZETÉS

A sugárvédelmi környezetellenőrzés (más néven környezeti monitorozás) kulcsfontosságú, ugyanakkor összetett, többfunkciós szerepet tölt be az egyének és a környezet sugárzásokkal szembeni védelmében. Elsődleges feladata a környezeti sugárzási szintek és a különböző környezeti elemek radionuklid-koncentrációjának nyomon követése. A környezeti monitorozási tevékenység végrehajtását azonban számos kihívás nehezíti. Ezek részben abból fakadnak, hogy a monitoringrendszereknek egymásnak némileg ellentmondó követelményeknek kell megfelelniük:

- a rövid idejű és gyors változások észlelését, ugyanakkor a radionuklid-szelektív mérések végrehajtását egyidejűleg lehetővé tevő mérési képességekkel kell rendelkezniük;
- az eredendően alacsony sugárzási szintek, radionuklid-koncentrációk nyomon követéséhez és már kismértékű szintemelkedések és szennyezések detektálásához szükséges mérési érzékenységgel – és ehhez igazodva kellően alacsony kimutatási határral – kell rendelkezniük, miközben a baleseti szituációkban várható magas szintek mérésére is alkalmasnak kell lenniük.

A környezetben mérendő fizikai hatásokat ugyanakkor eredendő térbeli és időbeli változékonyság, valamint heterogenitás jellemzi, amely nem csak a mérések reprezentativitását csökkentheti, hanem potenciális hibákat és bizonytalanságokat idézhet elő a minőségi és mennyiségi analízisekben.

A *mérési hiba*, amely a *mérési eredmény* és a vizsgálandó fizikai hatást megfelelően kifejező, jellemző és számszerűsítő *mérendő mennyiség* valódi értéke közötti különbséget számszerűsíti, hagyományosan két komponens, a véletlenszerű és a rendszeres (szisztematikus) mérési hiba együtteseként jelentkezik. Ezen komponensek egyike sem kiküszöbölhető, hatásuk azonban rendszerint mérsékelhető, megfelelő korrekciókkal kompenzálható annak érdekében, hogy minél nagyobb legyen a mérési eredmény és a mérendő mennyiség valódi értéke közti egyezést kifejező *mérési pontosság*. A méréshez kapcsolódó véletlenszerű és rendszeres hibák kifejezésén alapuló hibaanalízisek hosszú időn át képezték a méréstudomány (metrológia) gyakorlatának részét. Idővel azonban felismerték, hogy valamennyi ismert és feltételezett hibaösszetevő figyelembevétele és korrekciója ellenére a mérési eredmény bizonytalansággal terhelt maradhat. A mérendő mennyiség ugyanis nem írható le végtelen mennyiségű információ nélkül, így valódi értéke elviekben és a gyakorlatban is megismerhetetlen. Az ismereknek ezen eredendő hiányosságát tükrözi a mérési eredmény bizonytalansága, amelynek értékelése és kifejezése vált mára a mérési eredmény megfelelő értelmezésének általános konszenzuson alapuló megközelítésévé. A *mérési bizonytalanság* a mérni kívánt fizikai hatásra, vagyis a mérendő mennyiségre jellemző mennyiség, amelynek értékelésével biztosítható az eredmények érvényessége, összehasonlíthatósága és metrológiai nyomon követhetősége, csökkentésével növelhető a mérési eredmény megbízhatósága. A sugárvédelmi környezetellenőrzésben szintén kiemelt fontosságú a mérési eljárásra jellemző *kimutatási határ* meghatározása is, hiszen általa ellenőrizhető, hogy a mérési eljárás megfelel-e a hatás kimutatására vonatkozó

követelményeknek, észszerű mértékű lecsökkentésével biztosítható a mérési eljárás alkalmassága a mérési cél kiszolgálására.

A mérendő mennyiségre és a mérési eljárásra jellemző mennyiségek meghatározása tehát rendkívüli jelentőségű a mérések átfogó kiértékelésében és a kapott eredmények megfelelő értelmezésében. A méréskiértékelés gyakorlati megvalósításában azonban több kihívás is jelentkezik:

- az ionizáló sugárzások méréseinek, így a sugárvédelmi és környezeti mérések kiértékelése a legelterjedtebb gyakorlat szerint rendszerint a *bizonytalanságterjedési szabályon* alapuló eljárással kerül végrehajtásra. A bizonytalanságterjedési keretrendszer ugyanakkor több alkalmazhatósági korláttal is terhelt (ezek részletezését lásd később), az alkalmazhatósági feltételek ellenőrzésének szükségességét ennek ellenére rendre figyelmen kívül hagyják a gyakorlati alkalmazásokban.
- A méréskiértékelési eljárások a rutinfelhasználók számára sokszor nehezen implementálhatók a gyakorlatban vagy adaptálhatók saját mérési problémákra, részben abból kifolyólag, hogy a vonatkozó útmutatók, szabványok gyakran az alkalmazható módszertanok matematikai szempontú leírását tartalmazzák limitált számú és mérési problémára vonatkozó példa bemutatásával. Ezen felül a méréskiértékelés végrehajtását támogató szoftverek a számítási funkciók ismeretének és megértésének hiányában csak feketedobozként (black box) alkalmazhatók. Ezek a számítási eszközök ugyan lehetővé teszik az automatikus méréskiértékelés végrehajtását, bizonyos funkciók tekintetében hiányosak, limitáltan használhatók lehetnek.
- A mérési teljesítménynek a mérési bizonytalanság és kimutatási határ csökkentése révén elérhető javítása és annak mértéke gondos tervezés hiányában aránytalan lehet a befektetett erőforrások és az elért fejlődés mértékének tekintetében.

A méréskiértékelésben jelentkező, fentiekben tárgyalt kihívások szem előtt tartásával, és a mérési eljárásra és a mérendő mennyiségre jellemző mennyiségek meghatározásának sugárvédelmi környezetellenőrzésben való fontosságát mérlegelve, az elsőszerző doktori kutatása [1] során, amelyet a társszerzők témavezetésével végzett, többek közt a következő jelentősebb kihívások megoldási lehetőségeit járta körül:

- a méréskiértékelési eljárások alkalmazhatósági korlátai jelentkezésének vizsgálata a legelterjedtebb sugárvédelmi környezeti mérésekben;
- egy átlátható és értelmezhető méréskiértékelési eljárásrend kidolgozása, amely kiküszöbölheti az elérhető megoldások esetleges hiányosságait, azok alternatívájaként vagy kiegészítéseként használható, miközben elősegíti a gyakorlati alkalmazást a rutinfelhasználók számára is;
- a környezeti mérések legfőbb bizonytalansági forrásainak azonosítása és számszerűsítése, amelyek csökkentése révén eredményes javulás érhető el a mérési teljesítményben.

ESZKÖZÖK ÉS MÓDSZEREK

A mérésiértékelési módszerek alkalmazhatóságának vizsgálata

A mérendő mennyiséget reprezentáló mérési eredmény lehet egy mérőeszköz vagy mérőrendszer (közvetlen) értékmutatása, az értékmutató szerkezeetről leolvasott analóg vagy digitális kimenet, a jelzett érték vagy mérőjel. A valós mérési körülmények figyelembevétele azonban további befolyásoló mennyiségek, például korrekciós tényezők megállapítását teheti szükségessé a mérendő mennyiség meghatározásához. A mérendő mennyiség ezért legtöbbször nem közvetlenül mérhető érték, hanem az őt befolyásoló $X_1, X_2, \dots, X_m$ mennyiségekből határozható meg közvetetten – amelyek egyike a jelzett érték –, a mérési célhoz megválasztott mérési elvet megfelelően és kellő részletességgel leíró (jellemzően valós, explicit, egyváltozós) *mérési modell* segítségével:

$$y = G(x_1, x_2, \dots, x_m), \quad (1)$$

ahol:

y a *kimenő mennyiség*, a mérendő mennyiség Y valószínűségi változó hozzárendelésével tekintett értékének becslése (várható értéke),

$x_1, x_2, \dots, x_m$ a *bemenő mennyiségek*, a mérendő mennyiséget befolyásoló $X_1, X_2, \dots, X_m$ mennyiségek becslései (várható értékei),

G a bemenő mennyiségek és a kimenő mennyiség közötti függvénykapcsolat.

Ahogy az a bevezetésben már említésre került, a mérendő mennyiséghez társított standard bizonytalanság megadására általánosan bevett és a sugárvédelmi mérésekben legtöbbször alkalmazott eljárás az *Útmutató a mérési bizonytalanság kifejezéséhez* (angol elnevezésének rövidítéséből GUM) című dokumentumban [2][3] bevezetett bizonytalanságterjedési keretrendszer. A keretrendszer alapjául szolgáló általános bizonytalanságterjedési szabály szerint az $u(y)$ standard bizonytalanság a bemenő mennyiségek $u(x_i)$ standard bizonytalanságának érzékenységi együtthatókkal súlyozott összegzésével adható meg a következők szerint:

$$u(y) = \sqrt{u^2(y)} = \sqrt{\sum_{i=1}^m c_i^2 u^2(x_i) + 2 \sum_{i=1}^{m-1} \sum_{j=i+1}^m c_i c_j u(x_i) u(x_j) r(x_i, x_j)} \quad (2)$$

$$u(y) = \sqrt{\sum_{i=1}^m c_i^2 u^2(x_i)} \quad (3)$$

ahol:

c_i az i -edik érzékenységi együttható, rendszerint a mérési modell X_i változó szerinti, x_i helyen becsült elsőrendű parciális deriváltja, $\frac{\partial G}{\partial x_i}$,

$r(x_i, x_j)$ az x_i és x_j mennyiségekre vonatkozó korrelációs együttható, amely a változók relatív kölcsönös függőségének mértékét jellemzi. Statisztikailag független (nem korrelált) bemenő mennyiségek esetén $r(x_i, x_j) = 0$, ekkor a (2) egyenlet szerinti bizonytalanságterjedési szabály a (3) egyenlet szerinti alakra egyszerűsödik.

A bizonytalanságterjedés szabálya szerint meghatározott $u(y)$ standard bizonytalanság, illetve a mérendő mennyiség valamely lehetséges vagy feltételezett $\tilde{y}$ valódi értékéhez tartozó $\tilde{u}(\tilde{y})$ standard bizonytalanság a mérendő mennyiséget és a mérési eljárást jellemző további mennyiségek – a mérendő mennyiség valódi mennyiségértékének $\hat{y}$ *legjobb becslése* és az ahhoz társított $u(\hat{y})$ standard bizonytalanság, az $[y^-, y^+]$ *lefedettségi tartomány*, az y^* *döntési határérték* és az $y^\#$ *kimutatási határ* – származtatásához is szükséges. (Ezen, jelen cikkben részleteiben nem tárgyalt jellemző mennyiségek definíciójáról és meghatározásáról részletesen lásd az [1][2][3][4] dokumentumokat.)

A bizonytalanságterjedési szabály a G mérési modell elsőrendű Taylor-soros kifejtésén alapuló közelítésre épül. A közelítés, így a bizonytalanságterjedésen alapuló méréskiértékelés érvényessége megköveteli, hogy a mérési modell lineáris vagy linearizálható legyen. A mérendő mennyiséggel nem-lineáris viszonyban álló bemenő mennyiségek jelenléte ugyanis szignifikáns csonkítási hibához vezethet a Taylor-soros közelítésében. Amennyiben a mérési modell nem-linearitása jelentős, a Taylor-soros kifejtés magasabb rendű tagjainak figyelembevétele szükséges, amelyek meghatározása azonban algebrailag bonyolult és számításigényes feladat, különösen nagyszámú bemenő mennyiség esetén.

A mérendő mennyiség meghatározásához szükséges információk a bemenő mennyiségekről és a bemenő és kimenő mennyiségek közti (függvény)kapcsolatról rendelkezésre álló ismeretekből adódnak. A bizonytalanságterjedési keretrendszer esetében a bemenő mennyiségekre vonatkozó információk x_i becsült értékükön és $u(x_i)$ standard bizonytalanságukon alapulnak. Ezek észlelési sorozatok (ismételt megfigyelések) statisztikai elemzésén keresztül, vagy a rendelkezésre álló ismeretekre és információkra (például historikus mérési adatra, gyártói specifikációra, hitelesítési, kalibrálási, vagy kézikönyvi adatra) alapozott tudományos megítélés, fizikai vagy mérés technikai megfontolások révén határozhatók meg. A bizonytalanságterjedésen alapuló értékelés alkalmazhatóságának további feltétele, hogy a kimenő mennyiség normális (vagy Student-) eloszlással jellemezhető vagy közelíthető legyen. Ez a feltétel teljesül akkor, ha a bemenő mennyiségek a mellett, hogy a mérendő mennyiséggel lineáris viszonyban állnak, normális eloszlást követnek. Az eredményül kapott kimenő mennyiség konvolúciós eloszlása továbbá akkor tekinthető jó közelítéssel normálisnak, ha a centrális határeloszlás-tétel feltételei teljesülnek, a független, nem-normális eloszlású X_i bármelyik $c_i^2 u^2(x_i)$ komponense lényegesen kisebb az $u^2(y)$ varianciánál.

A bizonytalanságterjedési keretrendszer alkalmazhatósági feltételeinek megsértése esetén a *valószínűség-eloszlások terjedésén alapuló* eljárás jelenthet ideális alternatívát. Ebben a módszerben a jellemző mennyiségek a mérendő mennyiség $f_Y(\tilde{y}|\mathbf{a})$ *a posteriori* (utólagos) valószínűség-eloszlásának momentumaként és kvantiliseiként, vagy azokból kiindulva kerülnek számszerűsítésre. Ezen származtatott eloszlás a bemenő mennyiségekhez rendelt

$f_{X_i}(\tilde{x}_i|\mathbf{a}_i)$ valószínűség-eloszlásokkal (és az azokból képzett $f_X(\tilde{\mathbf{x}}|\mathbf{a})$ együttes bemenő valószínűség-eloszlással) konzisztens lesz. A valószínűségeloszlás-hozzárendelések minden rendelkezésre álló információ X_i -re vonatkozó $\mathbf{a}_i$ részhalmazán alapulnak. A valószínűség-eloszlások terjedése az eloszlás jellegét és jellemzőit is szem előtt tartja, nem korlátozódik tehát az eloszlás csak bizonyos paramétereinek figyelembevételére, szemben a bizonytalanságterjedéssel, amelyben a valószínűség-eloszlás a várható érték és szórás megállapításához szükséges alátámasztó információ csupán ($\mathbf{a}_i = \{x_i, u(x_i)\}$).

A valószínűség-eloszlások terjedésénél az elsődleges mérési eredmény az $f_Y(\tilde{y}|\mathbf{a})$ *a posteriori* valószínűség-eloszlás várható értéke, az $u(y)$ standard bizonytalanság az $f_Y(\tilde{y}|\mathbf{a})$ varianciájának négyzetgyöke. Amennyiben – az [5][6][7] útmutatókkal összhangban – *Monte Carlo módszert* (MCM) alkalmazunk az $f_Y(\tilde{y}|\mathbf{a})$ származtatásához, $j = 1, 2, \dots, n_M$ Monte Carlo kísérlet végrehajtásával, a bemenő mennyiségek $f_{X_i}(\tilde{x}_i|\mathbf{a}_i)$ valószínűségi eloszlásaiból inverz transzformációs mintavétel segítségével generáljuk a bemenő mennyiségek $\mathbf{x}_{(j)} = \{x_{1,j}, x_{2,j}, \dots, x_{m,j}\}$ készleteit. Az így generált $\tilde{x}_i$ lehetséges mennyiségértékeket a mérési modellbe behelyettesítve mindegyik $\mathbf{x}_{(j)}$ készlethez meghatározható a mérendő mennyiség egy lehetséges mennyiségértéke, $y_j = G(\mathbf{x}_{(j)}) = G(x_{1,j}, x_{2,j}, \dots, x_{m,j})$. Az MCM alkalmazásánál az y elsődleges mérési eredmény az $\mathbf{y}_M = \{y_1, y_2, \dots, y_{n_M}\}$ vektor számtani középértékeként ((4) egyenlet), az $u(y)$ standard bizonytalanság az $\mathbf{y}_M$ vektor tapasztalati szórásaként ((5) egyenlet) adható meg:

$$y = \frac{1}{n_M} \sum_{j=1}^{n_M} y_j. \quad (4)$$

$$u(y) = \sqrt{\frac{1}{n_M-1} \sum_{j=1}^{n_M} (y_j - y)^2}. \quad (5)$$

A valószínűség-eloszlások terjedésén alapuló kiértékelési eljárás megfelelően kezeli a nem-lineáris mérési modelleket, másfelől nem korlátozódik normális eloszlásokra. Ennélfogva a bizonytalanságterjedéshez képest realisztikusabb elemzést tesz lehetővé, illetve szélesebb körű mérési problémára alkalmazható megbízhatóan. Érvényessége azonban nagyban függ a bemenő mennyiségekre vonatkozó valószínűségeloszlás-hozzárendelések megfelelőségétől, amely így a mennyiségekre vonatkozó adekvát információk és azok minél teljesebb körű rendelkezésre állását igényli.

A bizonytalanságterjedésen és az eloszlások terjedésén alapuló, MCM-t alkalmazó eljárások alkalmazhatósága egyaránt megvizsgálásra került a legelterjedtebb sugárvédelmi környezetellenőrzési mérési problémák – dózis- és dózisteljesítmény-mérések és környezeti minták radioanalízise – mérés kiértékelésében. Mindez az adott mérési problémákra eltérő mérési modellek definiálásával, továbbá számos, egymástól különböző, alapvetően valós mérési problémákból vett, esetenként hipotetikus, de realisztikus paraméterkészleteket alkalmazásával került végrehajtásra. Az ilyen módon előidézett változó körülmények között megállapításra került a különböző kiértékelési eljárásokkal kapott eredmények egyeztősége, a különbözőségek jelentkezése és okai. (A részletes elemzésekhez lásd [1][8][9].)

A környezeti dózismérésekre vonatkozóan például elemzésre kerültek az eredendően felírható nem-lineáris és az abból képzett, linearizált mérési modell alkalmazásának hatásai. Ezen méréstípus esetében a besugárzási körülmények minél pontosabb figyelembevétele, így a megbízható mennyiség- és bizonytalanságvértékelés érdekében a jelzett dózisérték r (relatív) válaszokkal osztandó ((6) egyenlet). Ezen mennyiségek a dózismérő által jelzett érték és a besugárzási dózismennyiség konvencionális valódi értékének hányadosai, az egyes befolyásoló mennyiségeknek általuk számszerűsített, kijelzett értékre gyakorolt hatása a válasz megváltozását eredményezi. A mérési modell a nevezőben szereplő r mennyiségek tekintetében nem-lineáris, amelyek szignifikáns $u_{rel}(r) = u(r)/r$ relatív bizonytalansága sértene a bizonytalanságterjedés érvényességéhez szükséges feltételezések teljesülését. Összhangban például [10] ajánlásaival, a válaszjellemzők inverzeként kiszámított k korrekciós faktoroknak a bevezetésével, vagyis $k = 1/r$ változótranszformációval ugyanakkor általában lineáris mérési modell ((7) egyenlet) állítható elő:

$$h = \frac{N_0}{r_{nl} \prod_{q=1}^m r_q} M - h_{BG} \quad (6)$$

$$h = N_0 k_{nl} \prod_{q=1}^m k_q M - h_{BG} \quad (7)$$

ahol:

$h = H^*(10)$ a környezeti dózisegyenérték, a környezeti dózismérések mérendő mennyisége,

M a kijelzett (mért) dózisérték, a kiolvasási jelekből a dozimetriai rendszer algoritmusával generált érték, amely jellemzően a doziméter és a kiolvasó inherens jelzésével korrigált nettó sugárzás indukálta jelzés (vagy eleve algoritmizált úton megadva, vagy az M_0 inherenshátér-járolék egy újbóli, „nullás” kiolvasással meghatározott értékének kivonásával: $M = M_g - M_0$),

N_0 a kalibrációs tényező a valódi referencia dózisérték és a kijelzett dózisérték hányadosa referencia sugárzási térben és körülmények között végzett független mérésnél (a vizsgálatok során a (6) egyenlet nevezőjében a kiolvasó r_{ref} érzékenységevel és a detektor r_{det} normalizációs tényezőjével, illetve a (7) egyenletben a vonatkozó k_{ref} és k_{det} korrekciós faktorokkal figyelembe véve, erről részletesebben lásd [1][9]),

r_{nl}, k_{nl} a válasznak a dózis megváltozásával jelentkező nem-linearitását kifejező választényező és korrekciós faktor,

r_q, k_q ($q = 1, \dots, m$) relatív válaszok és az ezekből képzett korrekciós faktorok, tipikusan $\prod_{q=1}^m r_q = r_{env} r_{E,\alpha}$, ahol r_{env} a környezeti hatásokra – hőmérséklet, relatív nedvességtartalom, légnyomás stb. – mutatott relatív válasz, $r_{E,\alpha}$ a jelzés sugárzás energiájára és irányára mutatott függését kifejező relatív válasz, illetve $\prod_{q=1}^m k_q = k_{env} k_{E,\alpha}$,

$h_{BG} = \dot{h}_{BG} t$ a háttérsugárzás dózisa, a háttérsugárzás $\dot{h}_{BG}$ dózisteljesítménye és a két kiolvasás között eltelt t idő szorzata.

A környezeti dózismérésekre vonatkozó vizsgálatokhoz különböző bemenő paraméterkészletek lettek definiálva. A mérendő mennyiséget befolyásoló és emiatt a mérési modellbe bevonandó rendszerjellemzők értékei egyfelől a foton- és béta-sugárzás egyéni, munkahelyi és környezeti monitorozásának passzív integráló dozimetriai rendszereire vonatkozó szabványban [11] előírt, a paraméterek maximálisan megengedett legnagyobb hatása alapján kerültek meghatározásra. Ezek rendszerint $\pm r\%$ aszimmetrikus relatív tartományokként definiált értékek, amelyek $r_{(-)}$ alsó és $r_{(+)}$ felső határából kiindulva a k korrekciós faktorokra szimmetrikus tartomány számítható ki ($r \in [r_{(-)} \dots r_{(+)}] \rightarrow k = 1/r \in [1/r_{(+)} \dots 1/r_{(-)}] = [k_{(-)} \dots k_{(+)}]$). A méréskiértékelések ezen felül a rendszerjellemzőknek kísérletileg (pl. típusvizsgálatban) vagy modellezéssel számszerűsített értékeiből kiindulva is elvégzésre kerültek. A vizsgálatok tárgyát képezte továbbá annak megállapítása, hogy a mérési és besugárzási körülmények figyelembevétele – tipikusan a sugárzás energiájától és irányától való függés és a háttér dózisarulék – hogyan befolyásolja a dózis- és dózisteljesítmény-mérések méréskiértékelésének eredményeit. [1][9][12]

A környezeti mérések bizonytalansági forrásainak azonosítása és számszerűsítése

A legelterjedtebb környezeti mérésekre nézve – dózis- és dózisteljesítmény-mérések és környezeti minták (levegő, légköri kihullás, talaj) radioanalízise – azonosításra kerültek a mérendő mennyiséget és annak bizonytalanságát befolyásoló hatások és az azokat kifejező, mérési modellbe beillesztendő paraméterek. Ezen források mérési bizonytalansághoz való hozzájárulásának tipikus értékei több megközelítésből kiindulva is meghatározásra kerültek. A mérési modellekben szereplő bemenő mennyiségek értékeinek és bizonytalanságainak megadásakor részben a paraméterek elviekben lehetséges értékei lettek figyelembe véve, elsősorban szakirodalmi források, vagy például – a már említett – szabványban megengedett határértékek alapján. Emellett jellemző paraméterértékkészletek lettek definiálva a KFKI Telephelyi sugárvédelmi környezetellenőrző rendszer valós környezeti méréseinek elmúlt években több százas nagyságrendben történő kiértékelésével, eltérő mintavételi és mérési körülményekre (időtartamokra, gyakoriságokra, mintamennyiségekre stb.) vonatkozóan is.

Az X_i bemenő mennyiségeknek a mérendő mennyiséghez társított mérési bizonytalansághoz való hozzájárulása a $h(y, x_i)$ hozzájárulási együtthatón keresztül jellemezhető, amely – nem korrelált bemenő mennyiségek esetére – a következőképpen adható meg:

$$h(y, x_i) = \left[\frac{c_i u(x_i)}{u(y)} \right]^2. \quad (8)$$

Mivel a bizonytalanságterjedési szabály alkalmazásához a c érzékenységi együttható alapértelmezetten meghatározandó, a hozzájárulási együtthatók közvetlen eredményként megkaphatók. Ezzel szemben az MCM-alapú valószínűségeloszlások-terjedését alkalmazó méréskiértékelésben az érzékenységi együttható nem kerül kiszámításra, meghatározása ((9) egyenlet) érzékenységvizsgálat segítségével végezhető, melyből $h(y, x_k)$ hozzájárulási együttható a már ismert logika szerint kiszámítható ((10) egyenlet):

$$c_k = \frac{u(y_{(k)})}{u(x_k)} \quad (9)$$

$$h(y, x_k) = \left[\frac{c_k \cdot u(x_k)}{u(y)} \right]^2 = \left[\frac{u(y_{(k)})}{u(y)} \right]^2 \quad (10)$$

ahol:

$y_{(k)}$ és $u(y_{(k)})$ azon $x_{(k,j)} = \{x_1, \dots, x_{k,j}, \dots, x_m\}$ sorvektorokra kiszámított $y_{k,j}$ mennyiségértékek számtani közepe és szórása, ahol az egyik X_k ($1 \leq k \leq m$) bemenő mennyiséget $f_{X_i}(\tilde{x}_i | \mathbf{a}_i)$ sűrűségfüggvényéből mintázzuk a többi bemenő mennyiség várható értékén rögzítésével egyidőben ($X_i = x_i, i \neq k$),

$u(x_k)$ az X_k bemenő mennyiség mintavételezéssel kapott lehetséges mennyiségértékeinek szórása.

A mérési (analitikai) bizonytalanság értéke nem csak a befolyásoló mennyiségeken alapuló modellezési eljárással – bizonytalanságterjedéssel vagy valószínűség-eloszlások terjedésével –, hanem az ismételt megfigyelések statisztikai elemzésén (empirikus eljárás) alapuló értékelés útján is megállapításra került. Ez a KFKI Telephelyen a légkörkihullás-mintavételezésre és -mérésekre vonatkozóan végrehajtott többéves méréssorozat segítségével vált lehetővé, amelynek keretében többek között a száraz és nedves kiülepedés elkülönített és együttes mintavételezésének, valamint a különböző mintavételi gyakoriságoknak a légköri kihullásban mért aktivitáskoncentrációk értékére gyakorolt hatása is az elemzés tárgyát képezte (lásd [1][13][14]). Az azonos körülmények között végrehajtott párhuzamos mintavételek és mintamérések a mintavételi bizonytalanság meghatározására és mértékének mérési bizonytalansággal való összevetésére is lehetőséget teremtettek.

Méréskiértékelési eljárásrend kidolgozása

A méréskiértékelések egy, a meglévő lépéssorok felülvizsgálatával és továbbfejlesztésével újonnan definiált, a bizonytalanságterjedésen alapuló és az MCM-alapú valószínűségeloszlások-terjedését alkalmazó kiértékelési módszert egyaránt magában foglaló, többlépéses eljárásrend alapján kerültek végrehajtásra.

Az eljárásrend különböző lépéseiben használandó megoldásokra számos alternatív módszer alkalmazhatósága is részletesen meg lett vizsgálva, az egyes módszerek előnyeinek és korlátainak megállapítása érdekében. Elemezve lett például az érzékenységi együtthatók numerikus differenciáláson alapuló, véges (centrális, haladó, retrográd) differenciákat használó közelítéssel való megadásának alkalmazhatósága, amely módszerre akkor lehet szükség, ha az érzékenységi együtthatók nem adhatók meg analitikusan, a mérési modell parciális deriválásával, vagy nem állnak explicit módon rendelkezésre a kiértékelési modell vagy algoritmus számítógépes kód formájában való hozzáférhetősége miatt. Vizsgálva lett továbbá az is, hogy az MCM-alapú méréskiértékelésben a hozzájárulási együtthatók érzékenységvizsgálat útján történő meghatározása mellett milyen többletinformációt jelenhet egy, a lineáris regresszió alapuló módszer a mérési modell linearitásának megállapításában. De tanulmányozásra került a leggyakrabban hivatkozott és alkalmazott $[y^<, y^>]$ szimmetrikus

lefedettségi tartomány hátrányainak kompenzálhatósága is az $[y^<, y^>]$ *legsűkebb lefedettségi tartomány* definiálása útján, valamint a bizonytalanságterjedésen alapuló kimutatásihatárszámítás alapvetően implicit összefüggésének explicitté alakítása és iteratív megoldásának lehetősége. (A vizsgálatok és eredmények részletesebb kifejtéséhez lásd [1][8][9].)

A gyakorlati alkalmazhatóság biztosítása érdekében az eljárásrendbe olyan megoldások kerültek beépítésre, amelyek a széleskörben hozzáférhető és a legelterjedtebben használt szoftverkörnyezetben (Microsoft Excel) végrehajthatók. A méréskiértékelési eljárásrend és az abban foglalt módszerek funkcionalitása, használhatósága és teljesítménye más, rendelkezésre álló méréskiértékelési eszközökkel és szoftverekkel [15][16] végzett összehasonlító elemzés útján került validálásra.

EREDMÉNYEK

A méréskiértékelési módszerek alkalmazhatóságának vizsgálata

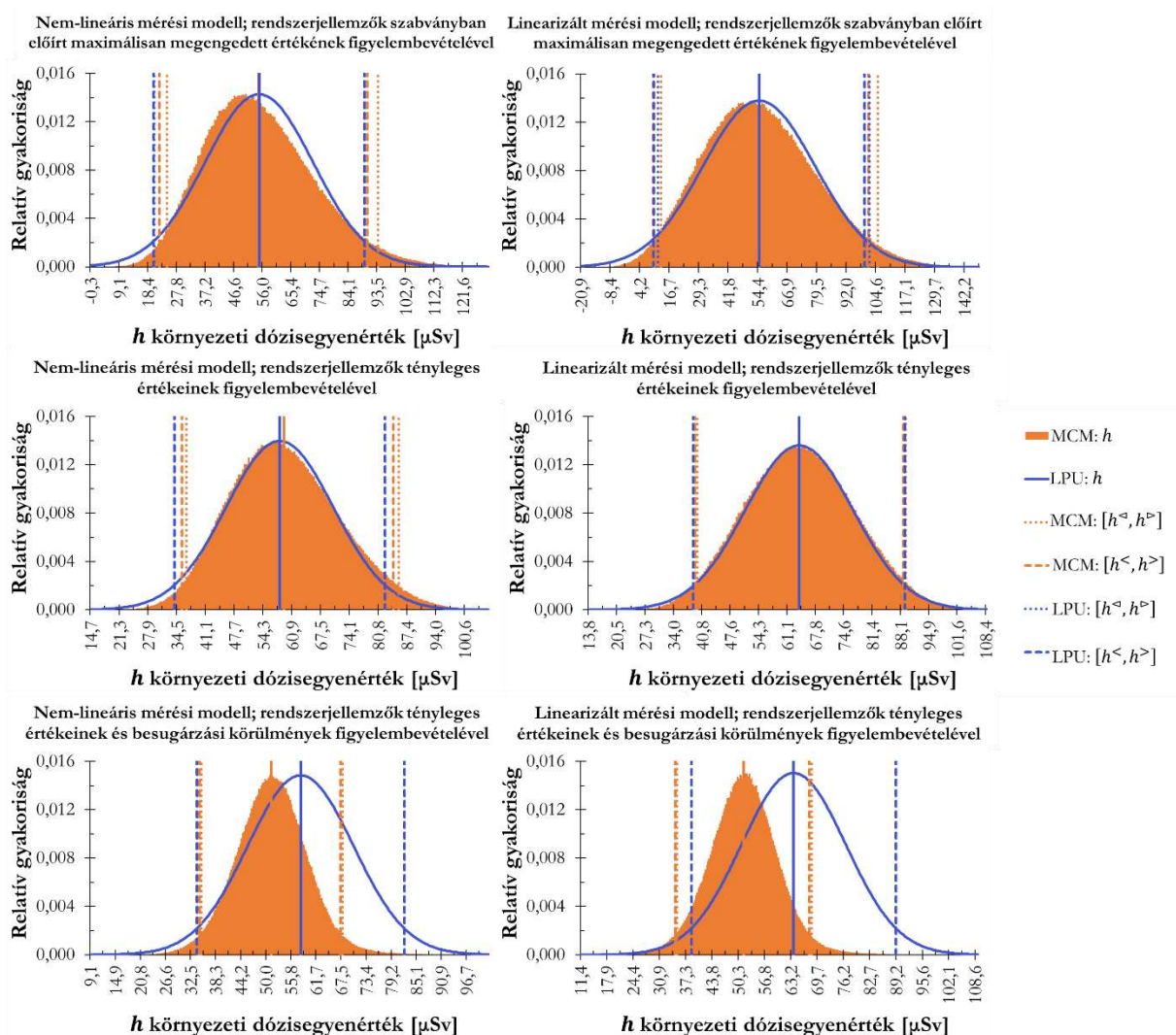
Több mérési problémán keresztül is igazolást nyert, hogy a környezeti monitorozás rutin gyakorlatában is csorbulhat a méréskiértékelésben leggyakrabban alkalmazott bizonytalanságterjedési keretrendszer érvényessége. A sugárvédelmi mérésekre ugyanis sok esetben eredendően nem-lineáris mérési modell írható fel, a mérési modell nevezőjében szereplő mennyiségek – a számláláson alapuló vagy spektrometriai aktivitáskoncentráció-méréseknél például az ε detektálási határfok, az m mintamennyiség, vagy potenciálisan figyelembe vett korrekciós tényezők – a modell nem-linearitását eredményezhetik. A bizonytalanságterjedés összefüggésének megbízható alkalmazásához az y kimenő mennyiséggel nem-lineáris viszonyban álló x_i bemenő mennyiség(ek) relatív bizonytalanságát kellően kicsire ($u(x_i)/x_i = u_{rel}(x_i) < 10\%$) szükséges csökkenteni. A bizonytalansági összetevők csökkentése a mérési teljesítmény javítása mellett így a bizonytalanságterjedési keretrendszeren alapuló méréskiértékelés megfelelőségének biztosításához is hozzájárulhat. Egyes mérési problémáknál megvalósítható a mérési modell linearizálása. A környezeti dózismérések vizsgált példája azonban demonstrálta, hogy ez adott esetben csak a modell egyszerűsítésével végrehajtható, amely a kiszámítást megkönnyíti ugyan, de információvesztéshez vezethet. A dózisméréseknél alkalmazott mérési modell a $k = 1/r$ változótranszformációval például akkor linearizálható (lásd a (6) és (7) egyenleteket), ha nem teszünk különbséget a természetes eredetű háttérsugárzásra adott r_{BG} (különösen a másodlagos kozmikus sugárzásra adott, a töltéssel rendelkező komponensekre mutatott érzékenység miatt egységnyinél nagyobb) válasz és a sugárzás energiájára és irányára mutatott $r_{E,\alpha}$ válasz között ($r_{BG} = r_{E,\alpha}$).

Ugyanakkor szemléltetésre került, hogy a bizonytalanságterjedési keretrendszer érvényességét nem csak a kimenő mennyiséggel nem-lineáris viszonyban álló és nem-normális eloszlású bemenő mennyiség(ek) relatív bizonytalanságának nagysága, hanem mérési bizonytalansághoz való hozzájárulásuk is meghatározza. Több mérési problémán és számítási példán keresztül is bemutatásra került, hogy a nem-normális eloszlású bemenő mennyiségek bizonytalansági hozzájárulásának növekedésével és dominánssá válásával egyre jobbra torzul a

kimenő mennyiség eloszlása a mennyiséget jellemző paraméterek meghatározásában alapértelmezettnek vett normális eloszláshoz képest.

A környezeti dózis- és dózisteljesítmény-mérések esetére nézve bemutatásra került, hogy amennyiben a mérőrendszerek karakterisztikájáról nem rendelkezünk megfelelő információval, a mérendő mennyiséget befolyásoló rendszerjellemzők és paraméterek szabványban előírt megengedett legnagyobb hatása alapján becslés adható a mérési bizonytalanságra. Azonban az ezen megközelítésben figyelembe veendő nem-normális eloszlással jellemezhető, kiemelten az r_{nl} és $r_{E,\alpha}$ választényező és a vonatkozó k_{nl} és $k_{E,\alpha}$ korrekciós faktorok jelenléte és az $r_{E,\alpha}$ és $k_{E,\alpha}$ domináns bizonytalansági hozzájárulása még az eredendően nem-lineáris mérési modell megfelelő linearizálásánál is korlátozhatja a bizonytalanságterjedésen alapuló méréskiértékelés alkalmazhatóságát (lásd az 1. ábra felső sorban szereplő diagramjait). (A dózisválasz nem-linearitását kifejező r_{nl} és k_{nl} paraméterekre egyenletes eloszlást feltételezhetünk, hiszen a szabványban előírt tartományon egyenletes valószínűséggel vehetnek fel mennyiségértékeket. Az $r_{E,\alpha}$ és $k_{E,\alpha}$ paraméterekre nézve háromszögeloszlást definiálhatunk, kifejezve azon tulajdonságukat, hogy lehetséges mennyiségértékeiket a szabványban előírt megengedett legnagyobb hatás megszabta szélsőértékekhez közel kisebb valószínűséggel veszik fel, mint az intervallum középpontjának közelében. Mivel szélsőértékeik a sugárzás extrém α beesési szögei mellett (és kis E energiák esetén) jelentkeznek, a környezetben széles szögtartományban beeső sugárzás miatt előfordulásuk nem tekinthető nagyon valószínűtlennek – ahogyan ez történne a normális eloszlás esetében.)

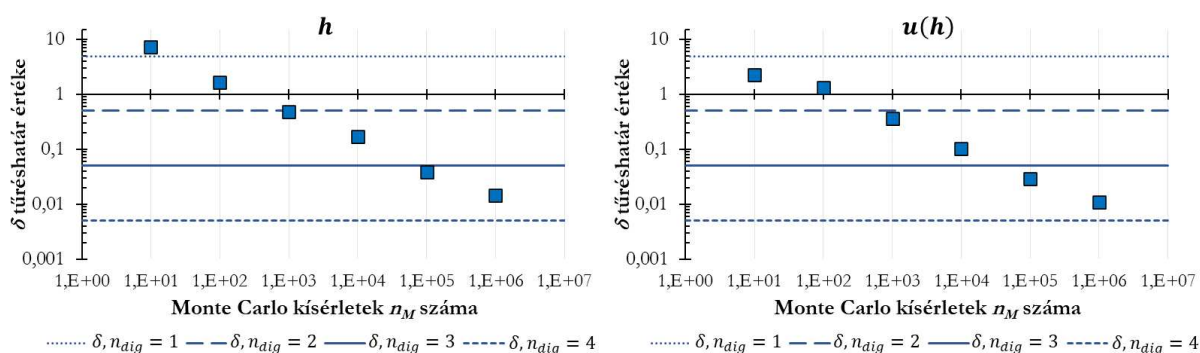
Demonstrálva lett továbbá, hogy a bizonytalanságterjedéses módszer korlátozottan használható a besugárzási körülmények figyelembevételével végzett kiértékelésben is, tekintve, hogy a kimeneti mennyiségről és annak valódi eloszlásáról csak korlátozott információt tud nyújtani. Az ekkor figyelembe veendő tényezők némelyikének, tipikusan az $r_{E,\alpha}$ és $k_{E,\alpha}$ mennyiségeknek a beeső sugárzás energia- és szögeloszlását egyaránt figyelembe vevő és a $\dot{h}_{BG}$ háttérsugárzási dózisteljesítmény csapadék előidézte dózisteljesítmény-növekmények miatti jobbra tolódó, valós mérési körülményekre nézve reprezentatívabb eloszlásai aszimmetrikusak, akár diszkrét is lehetnek, amelyek a bizonytalanságterjedési keretrendszerben nem vehetők tekintetbe, ellentétben az MCM-mel végzett eloszlások terjedésével. Az ebből fakadó elvi különbség akár 50%-ot meghaladó eltérést is okozhat a két kiértékelési módszer eredményei között (lásd az 1. ábra alsó sorban szereplő diagramjait).



1. ábra. Bizonytalanságtérjedési szabályon (angol megfelelőjének rövidítéséből LPU, kékkel) és MCM-alapú valószínűségeloszlások-terjedésén alapuló méréskiértékelés (narancssal) eredményeként kapott h környezeti dózisegyenérték eloszlása és becslése (valamint a $[h^a, h^b]$ szimmetrikus $[h^{<<}, h^{>>}]$ legszűkebb lefedettségi tartomány határai) nem-lineáris (bal oldalt) és linearizált (jobb oldalt) mérési modell esetén, eltérő paraméterkészletek figyelembevételével [1][9]

Ahogy erre a módszertant leíró szakaszban már utaltunk, az MCM-alapú méréskiértékelés érvényessége is bizonyos feltételekhez kötött. Egyfelől megszabja a bemenő mennyiségek valószínűségeloszlás-hozzárendeléseinek és a belőlük származtatott kimenő mennyiség eloszlásának megfeleltetése, amelyet az határoz meg, hogy az eloszlások a valósághoz mennyire jól illeszkedve jellemzik a kérdéses mennyiséget. Általánosan kijelenthető, hogy minél nagyobb n_M Monte Carlo kísérletszám szükséges ahhoz, hogy a mintavételezéssel kapott lehetséges mennyiségértékek adott Monte Carlo futtatáson belül kevésbé szóródjanak (vagyis a mennyiség mintázott értékeinek szórásaként meghatározott bizonytalansága minél kisebb legyen), illetve, hogy a származtatott jellemző mennyiségek értéke futtatásról futtatásra minél kevésbé legyen változó, stabilizálódjon. A nagyobb kísérletszám azonban megnövekedett számításigényet és futtatási időt von maga után. A gyakorlatban tehát a Monte Carlo

kísérletek számát egyszerre kell optimalizálni a rendelkezésre álló számítási kapacitásokhoz és a numerikus eredmények (jellemző mennyiségek) elérni kívánt pontosságához. A numerikus eredmények statisztikai értelemben akkor tekinthetők stabilizáltnak, ha az adott n_M Monte Carlo kísérletszám mellett elvégzett ismételt futtatások eredményeinek átlagához tartozó szórás kétszerese ($2s_{avg}$) egy, az értékek adott n_{dig} értékes jegyre vonatkozó egyezését kifejező δ numerikus tűréshatáron belül marad. A 2. ábra mutatja be, hogy a 10 ismételt Monte Carlo futtatásban kapott h környezeti dózisegyenérték mérendő mennyiségre és a hozzá társított $u(h)$ standard bizonytalanságra vonatkozó $2s_{avg}$ hogyan csökken az n_M Monte Carlo kísérletek megnövelt számával. Látható, hogy a numerikus eredmények 2 értékes jegyre elvart egyezéséhez tipikusan már $n_M = 10^3 \dots 10^4$ számú Monte Carlo kísérlet is elegendő, 3 értékes jegy esetén viszont legalább $n_M = 10^5$ kísérletszám szükséges a numerikus eredmények stabilizálódásához.



2. ábra. 10 ismételt Monte Carlo futtatásban kapott h környezeti dózisegyenérték mérendő mennyiségre és a hozzá társított $u(h)$ standard bizonytalanságra kapott értékek átlagához tartozó szórás kétszeresének ($2s_{avg}$, kék négyzet) változása az n_M Monte Carlo kísérletek függvényében [1]

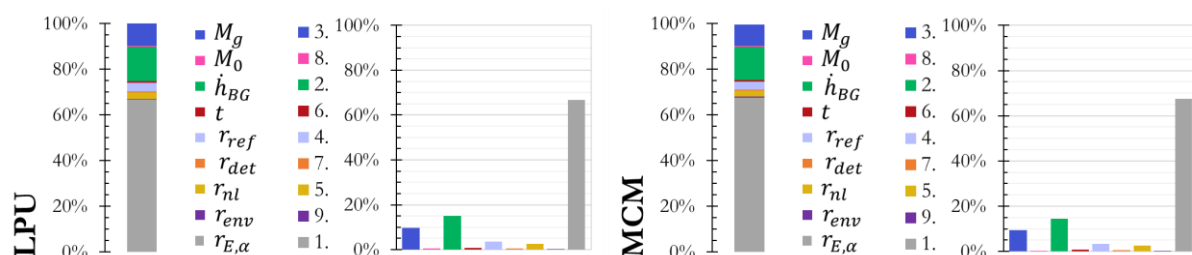
A környezeti mérések bizonytalansági forrásainak azonosítása és számszerűsítése

Ahogy azt az előzőekben ismertettük, a bizonytalansági hozzájárulások számszerűsítése egyfelől információval szolgál a bizonytalanságterjedési keretrendszer megfelelőségének értékeléséhez. Az erre vonatkozó eredmények másfelől elősegítik a hatékony bizonytalanság- és kimutatásihatár-csökkentést is. A hozzájárulási együtthatók meghatározása révén ugyanis azonosíthatók a mérendő mennyiséghez társított standard bizonytalanság azon, legnagyobb hozzájárulású bizonytalansági komponensei, amelyek csökkentésével hatásos javulás érhető el a mérési teljesítményben, elkerülve azt, hogy aránytalan erőfeszítéseket összpontosítsunk a nem jelentős hozzájárulású komponensek bizonytalanságának redukálására.

A környezeti dózis- és dózisteljesítmény-mérések esetében rendszerint az $r_{E,\alpha}$ választényező vagy a mérési modelltől függően a vonatkozó $k_{E,\alpha}$ korrekciós faktor dominálja a bizonytalanságot (lásd a 3. ábrát). Megengedett értékeikre nézve a vonatkozó szabványban [11] meglehetősen széles tartomány definiált: a sugárzás energiájára és irányára mutatott $r_{E,\alpha}$ válasz -29% és +67% közé kell, hogy essen, amely alapján a $k_{E,\alpha}$ korrekciós faktor maximálisan megengedett értéke $\pm 40\%$ szimmetrikus tartományon belül kell, hogy maradjon. Mindez a

paraméter 10%-ot meghaladó relatív bizonytalanságát eredményezi. A mérőrendszer rendszerjellemzőinek tényleges bizonytalanságai a szabványban megengedett értékeknél jellemzően kisebbek. A rendszerjellemzők valódi paraméterértékeinek és azok bizonytalanságainak például típusvizsgálat útján történő számszerűsítése és a mérendő mennyiség kiszámításában való figyelembevétele tehát a mérési bizonytalanság csökkentését eredményezi. A példaszámításokban a mérési bizonytalanság akár kevesebb mint a felére csökkenthetővé vált a vizsgált mérőrendszer valódi rendszerjellemzőinek és a besugárzási körülményeknek a figyelembevételével (vesd össze a mérendő mennyiség lehetséges mennyiségértékeinek szóródását az 1. ábra felső és középső sorban szereplő diagramjain).

A bizonytalanság-összetevők hozzájárulásának számszerűsítése szempontjából fontos eredmény annak igazolása is, hogy a bizonytalanságterjedés során meghatározott bizonytalanság-összetétel még abban az esetben is pontosan megadja a befolyásoló mennyiségek sorrendjét bizonytalansági hozzájárulásuk nagysága szerint, azonosítva a domináns hozzájárulású bizonytalanság-összetevőket, ha a mérési eljárásra és a mérni kívánt fizikai hatásra jellemző értékekre inadekvát becslést ad.



3. ábra. A környezeti dózismérés bizonytalanság-készlete és a figyelembe vett befolyásoló mennyiségek sorrendje (1.–9.) bizonytalansági hozzájárulásuk nagysága szerint, a bizonytalanságterjedési szabályon (angol megfelelőjének rövidítéséből LPU, bal oldalt) és az MCM-alapú valószínűségeloszlások-terjedésén alapuló (jobb oldalt) elemzési módszerekkel meghatározva, nem-lineáris mérési modell esetén, a rendszerjellemzők tényleges értékeit figyelembe vevő paraméterértékkészletekből kiindulva [1][9]

A légkörikihullás-mérések mintavételi és a minták gamma-spektrometriai elemzésében jelentkező analitikai (mérési) bizonytalanság számszerűsítésére vonatkozó vizsgálatok az 1. táblázatban összesített eredményeket adták. Látható, hogy az ismételt megfigyelések statisztikai elemzésén (empirikus eljárás) alapuló értékeléssel kapott mintavételezési bizonytalanság többszöröse volt az analitikai (mérési) bizonytalanság így becsült értékének, az általuk kiadott teljes bizonytalanságot 90%-ot meghaladó hozzájárulással dominálva. A befolyásoló mennyiségeken alapuló modellezési eljárással – bizonytalanságterjedéssel vagy az eloszlások terjedésével – kapott analitikai bizonytalanság rendre nagyobbak adódtak az empirikus eljárással becsült analitikai bizonytalansághoz képest. Ennek oka, hogy az empirikus eljárással kapott becslés az analitikus bizonytalanságnak csak egy részét, a megismételhetőségi összetevőit tartalmazza. Míg az analitikai bizonytalanság empirikus eljárással számszerűsített értéke 10% alatt maradt, a modellezési eljárással számszerűsített értéke kis aktivitáskoncentrációnál akár az 50%-ot is meghaladta. A gamma-spektrometriai mérési bizonytalanság legnagyobb hozzájárulású befolyásoló mennyisége a nettó csúcsterület volt

(tipikusan 85%-ot meghaladó domináns bizonytalansági hozzájárulással). Például a mérési idő megnövelésével vagy a kiszámításánál figyelembe vett csatornaszám-tartomány megváltoztatásával redukált bizonytalansága az analitikus bizonytalanságot akár 30%-ot, a kimutatási határt akár 50%-ot meghaladó mértékben csökkentette (lásd [1][17]).

1. táblázat. Léggöríkihullás-mérések mintavételi és analitikai (mérési) bizonytalanságának számszerűsítése [1]

Értékelési eljárás	Bizonytalansági forrás	Relatív bizonytalanság (%)			Relatív hozzájárulás a teljes bizonytalansághoz (%)		
		Min.	Max.	Átlag	Min.	Max.	Átlag
Empirikus	Mintavétel	12,6	17,8	15,5	92,1	100	97,0
	Mérési (analitikus)	0,320	5,21	2,29	0,0385	7,92	3,03
	Teljes	12,7	18,5	15,8	100	100	100
Modellezés	Mérési (analitikus)	4,11	52,9	26,5	-	-	-

Méréskiértékelési eljárásrend kidolgozása

A kidolgozott méréskiértékelési eljárásrend részletes leírását és az abban alkalmazott módszerek megfelelőségének vizsgálatát az elsőszerző doktori értekezése [1] tartalmazza. A munka egyik fontos eredményeként egy módszertani útmutató [18] is kidolgozásra került az Országos Atomenergia Hivatal számára a sugárvédelmi környezetellenőrző mérések kiértékeléséről és az adatsorok elemzéséről. A méréskiértékelési eljárásrend gyakorlati alkalmazhatóságát a dokumentumban számos, a sugárvédelmi környezetellenőrzés gyakorlatából vett példa, magyarázó értelmezés, javaslat és számítási séma segíti.

Az eljárásrend teljeskörű méréskiértékelés végrehajtását biztosítja, a következő 11 lépésen keresztül:

1. lépés: Mérendő mennyiség definiálása
2. lépés: Mérési modell felállítása
3. lépés: Mérési modell vizsgálata a méréskiértékeléshez használandó eljárás megválasztásához
4. lépés: Bemenő mennyiségek jellemzése
5. lépés: Elsődleges mérési eredmény és standard bizonytalanságának meghatározása, hozzájárulási együtthatók kiszámítása
6. lépés: Standard bizonytalanság értékelése a mérendő mennyiség valódi értékének függvényében
7. lépés: Döntési határérték kiszámítása és döntéshozatal a fizikai hatás igazolt jelenlétére vonatkozóan
8. lépés: Kimutatási határ kiszámítása és a mérési eljárás kimutatási követelményeknek való megfelelésének értékelése
9. lépés: Mérendő mennyiség lefedettség tartományának kiszámítása
10. lépés: Mérendő mennyiség legjobb becslésének és standard bizonytalanságának kiszámítása

11. lépés: Eredményközlés, dokumentáció

Ahogy az a módszertani szakaszban már említésre került, a méréskiértékelési eljárásrend a bizonytalanságterjedésen alapuló és az MCM-alapú valószínűségeloszlások-terjedését alkalmazó kiértékelési módszert egyaránt magában foglalja. (A 3., a kiértékeléshez használandó megközelítés kiválasztására vonatkozó lépéstől kezdődően a lépéssor a 11. adatközlési lépésig kettéválik, minden lépésre párhuzamosan megadva a bizonytalanságterjedésen alapuló és az MCM-alapú valószínűségeloszlások-terjedését alkalmazó módszerek számításait. A módszerek megválasztását és a szükséges lépések végrehajtását a lépéssorban több beiktatott vizsgálati és döntéshozatali pont is meghatározza.) A két kiértékelési elv együttes megjelenése azért lényeges, mert amennyiben a bizonytalanságterjedési keretrendszer alkalmazhatóságának kétségessege felmerül, vagy kizárólagos alternatívaként az MCM-alapú kiértékelés használandó vagy célszerűen mindkét megközelítésen alapuló kiértékelés végrehajtandó, a köztük jelentkező különbségek az eredmények összevetésének értékelésével.

A méréskiértékelési eljárásrendben alkalmazott megoldások úgy kerültek kidolgozásra, hogy lehetővé tegyék a legelterjedtebben elérhető, táblázatkezelő szoftverkörnyezetben (Microsoft Excel), alapértelmezetten rendelkezésre álló funkciók segítségével végrehajtható felhasználást. Különösen az MCM-alapú kiértékelés táblázatkezelő szoftverben való végrehajtásának támogatása és részletes leírása jelentős, amelyet az általános gyakorlatban rendkívül ritkán alkalmaznak a numerikus szimulációs jellegéből fakadó számítási komplexitása, nagy számításikapacitás-igénye és programozási ismereteket igénylő végrehajtása miatt. A táblázatkezelő szoftverben végzett számítások végrehajtásának egyik nagy előnye, hogy a legelterjedtebb méréskiértékelési módszerek hatékony és átlátható, valamint a szoftveres elterjedtség okán széleskörű alkalmazását teszik lehetővé a rutinszerű alkalmazásokban is. Az eljárásrend átláthatósága mellett a kereskedelmi forgalomban kapható vagy ingyenesen hozzáférhető, a méréskiértékelés automatikus végrehajtását lehetővé tevő szoftverekhez képest azon előnnyel is bírhat, hogy a számítási lépések és funkciók tekintetében kompromisszummentes végrehajtást tesz lehetővé. Egyes szoftverek [15] ugyanis csak a mérési bizonytalanság becslését végzik el, a döntéshatárérték- és kimutathatóság-számításokat például nem. Míg más szoftverek [16] ugyan már a legújabb, ISO 11929:2019 nemzetközi szabványsorozatban [4][7] is definiált, a mérendő mennyiségre és a mérési eljárásra jellemző mennyiségek teljeskörű meghatározását elvégzik, a beépített nevezetes eloszlásokon felül tetszőleges, például tapasztalati eloszlások bemenő mennyiségekhez való hozzárendelésére azonban nem adnak lehetőséget. Az MCM-en alapuló eljárásban a lehetséges mennyiségértékek adott valószínűség-eloszlásból történő szimulálásához inverz transzformációs mintavételt alkalmazunk, amely folytonos és diszkrét eloszlásokra nézve egyaránt végrehajtható (ezek részletes magyarázatához lásd [1]).

A többlépéses eljárásrendbe több ponton is vizsgálati lépések kerültek beiktatásra. Ezek a lépések nem csupán a mérési eljárások megfelelőségének ellenőrzésére szolgálnak (amely különösen lényeges a szűkebb érvényességi tartománnyal bíró bizonytalanságterjedési keretrendszer megfelelőségének ellenőrzésében), hanem iránymutatást adnak a méréskiértékelés szükséges végrehajtandó lépéseiről és az eredményközlés megfelelő módjáról is. Az eljárásrend egyes lépéseiben használható alternatív megoldások alapos

vizsgálata és biztosítása pedig a tekintetben előnyös, hogy ilyen módon lehetőség adódik a módszerek egyes értékelési lépésekben egymást kiváltó vagy kiegészítő megválasztására, a mérési körülményektől és feltételektől, a rendelkezésre álló számítási kapacitásoktól és képességektől, valamint az egyéni felhasználói igényektől vagy preferenciáktól függően.

ÖSSZEFOGLALÁS

A sugárvédelmi környezetellenőrzésben jelentkező bizonytalanságokat számos aspektusból vizsgáltuk. Egyfelől azonosításra és számszerűsítésre kerültek a legelterjedtebb sugárvédelmi környezeti mérések – dózis- és dózisteljesítmény-mérések és környezeti minták radioanalízise – legfőbb bizonytalansági forrásai, amelyek csökkentése révén eredményes javulás érhető el a mérési teljesítményben.

A sugárvédelmi környezetellenőrzés gyakorlatában a mérési bizonytalanság és a mérendő mennyiséget és a mérési eljárást jellemző ebből származtatott egyéb mennyiségek legtöbb esetben a bizonytalanságterjedési szabályon alapuló eljárással kerülnek meghatározásra. Az eljárás alapjául szolgáló matematikai módszer sajátosságaiból következik azonban, hogy a bizonytalanságterjedési keretrendszer számos alkalmazhatósági korláttal terhelt, rendszerint lineáris vagy linearizált mérési modelleknél és normális eloszlással jellemezhető mérendő mennyiségeknél tekinthető érvényesnek. Korlátozottan használható továbbá a környezeti viszonyok realisztikus figyelembevételére, mivel azok gyakran aszimmetrikus vagy akár diszkrét eloszlású paramétereken keresztül jellemezhetők. Az eljárást a gyakorlatban ennek ellenére sokszor az alkalmazhatósági feltételek teljesülésének ellenőrzése nélkül használják. Igazoltuk, hogy ugyan sok mérési problémára megbízhatóan alkalmazható, a rutin gyakorlatban is csorbulhat a méréskiértékelésben leggyakrabban alkalmazott bizonytalanságterjedési keretrendszer érvényessége, amely a jellemző mennyiségek inadekvát becsléseit eredményezi. Ez az MCM-t alkalmazó eloszlások terjedésén alapuló méréskiértékelés végrehajtását teheti szükségessé, amely szélesebb körű mérési problémára alkalmazható megbízhatóan azáltal, hogy a fenti alkalmazhatósági korlátok nem terhelik, vagyis nem korlátozódik normális eloszlásokra és megfelelően kezeli a nem-lineáris mérési modelleket is. Ezen eljárás érvényessége ugyanakkor nagyban függ a mérendő mennyiséget befolyásoló paraméterek valószínűségeloszlás-hozzárendeléseinek megfelelőségétől, amely így a mennyiségekre vonatkozó információk megfelelőségét és minél teljesebb körű rendelkezésre állását igényli. A számítási komplexitás és a számításigény csökkentése érdekében azonban szükséges az MCM-alapú módszernek a rendelkezésre álló számítási kapacitásokhoz és az elérni kívánt pontossághoz igazított optimalizálása.

Átlátható, értelmezhető és széleskörben elérhető szoftverkörnyezetben megvalósítható többlelépéses méréskiértékelési eljárásrend került kidolgozásra, amely kiküszöbölheti az elérhető megoldások esetleges hiányosságait, azok alternatívájaként vagy kiegészítéseként használható, miközben elősegíti a különböző feltételek és körülmények között használandó méréskiértékelési módszerek gyakorlati alkalmazását a rutinfelhasználók számára is.

IRODALOM

- [1] Jakab D. Improvement and optimization of methods used in environmental radiation monitoring. *Doktori (Ph.D.) értekezés*. Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Fizikai Tudományok Doktori Iskola; 2023. <http://hdl.handle.net/10890/52926>.
- [2] JCGM. Evaluation of measurement data – Guide to the expression of uncertainty in measurement. JCGM 100:2008.
- [3] ISO/IEC. Uncertainty of measurement – Part 3: Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM:1995). ISO/IEC Guide 98-3:2008.
- [4] ISO. Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the coverage interval) for measurements of ionizing radiation – Fundamentals and application – Part 1: Elementary applications. ISO 11929-1:2019.
- [5] JCGM. Evaluation of measurement data – Supplement 1 to the “Guide to the expression of uncertainty in measurement” – Propagation of distributions using a Monte Carlo method. JCGM 101:2008.
- [6] ISO/IEC. Uncertainty of measurement – Part 3: Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM:1995) – Supplement 1: Propagation of distributions using a Monte Carlo method. ISO/IEC Guide 98-3/Suppl.1:2008.
- [7] ISO. Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the coverage interval) for measurements of ionizing radiation – Fundamentals and application – Part 2: Advanced applications. ISO 11929-2:2019.
- [8] Jakab D., Pázmándi T., Zagyvai P. Effects of the uncertainty contributions on the methods used for measurement uncertainty evaluation, *Applied Radiation and Isotopes*, 2021, 173, 109704. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2021.109704>.
- [9] Jakab D., Pázmándi T., Zagyvai P. Procedures for evaluating passive environmental dosimetry measurements, and the reliability of associated uncertainty assessments and characteristic limit calculations. <http://dx.doi.org/10.2139/ssrn.4498961>.
- [10] Ambrosi P., Garcia-Alves J., Bartlett D. Technical Recommendations for Monitoring Individuals Occupationally Exposed to External Radiation. Radiation Protection no. 160. European Commission, Publications Office, Luxembourg; 2009.
- [11] IEC. Radiation protection instrumentation – Dosimetry systems with integrating passive detectors for individual, workplace and environmental monitoring of photon and beta radiation. IEC 62387:2020.
- [12] Jakab D., Apáthy I., Csőke A., Deme S., Endrődi Zs., Tósaki L., Pázmándi T. Comparative analysis of active and passive dosimetry systems used in environmental gamma radiation monitoring, In: 5th International Conference on Environmental Radioactivity (ENVIRA 2019) Proceedings (eds. I. Světlík et al.); 2019, 42–45. <https://doi.org/10.14311/ENVIRA.2019>.
- [13] Jakab D., Pázmándi T., Zagyvai P. The revision of the current radioactive fallout measurements at the KFKI campus in Budapest, Hungary, In: Proceedings of 6th International Youth Conference on Energy (IYCE), 2017. <https://doi.org/10.1109/IYCE.2017.8003711>.

- [14] Jakab D., Endrődi Zs., Pázmándi T., Tósaki L., Zagyvai P. Evaluation of the precision of radioactive deposition measurements, In: 9th International Conference on Radiation in Various Fields of Research (RAD 2021), 2021. https://rad2021.rad-conference.org/vs/RAD_2021-Dorottya_Jakab.pdf.
- [15] NIST Uncertainty Machine, <https://uncertainty.nist.gov/>
- [16] UncertRadio, <https://www.thuenen.de/en/institutes/fisheries-ecology/fields-of-activity/marine-environment/coordination-centre-of-radioactivity/uncertradio>
- [17] Jakab D., Endrődi Zs., Pázmándi T., Zagyvai P. Methods for improving the detection capabilities of environmental radioactivity measurements in the light of increased atmospheric radioactivity levels in 2020, In: Proceedings of the 15th International Congress of the International Radiation Protection Association (IRPA15); 2021, T2.5-P1223. <https://irpa.net/irpa15/T2.5-P1223.pdf>.
- [18] Jakab D., Pázmándi T., Zagyvai P. Módszertani útmutató a sugárvédelmi környezetellenőrző mérések kiértékeléséről és adatsorok elemzéséről, *készült az Országos Atomenergia Hivatal megrendelésére* (OAH-ABA-32/21-M/1), EK-SVL-2022-270-02-01-01; 2022.

Készült a SOMOS Alapítvány támogatásával.

AZ EGÉSZTESTSZÁMLÁLÓ KALIBRÁCIÓJA ÉS KIÉRTÉKELÉSI ELJÁRÁSAINAK FEJLESZTÉSE

Kocsonya András*, Pántya Anna, Szabó Dezső, Harangozó Imréné,
Zagyvai Péter, Endrődi Zsuzsa

HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpont, 1221 Budapest, Konkoly-Thege Miklós út 29-33.

*kocsonya.andras@ek.hun-ren.hu

A kézirat beérkezett: 2024.03.26.

Közlésre elfogadva: 2024.05.29.

The whole-body-counter of the Centre for Energy Research is in operation since 60 years. The paper summarizes the main developments of the last decade. A new HPGe detector was installed, and efficiency calibration was performed by the new detector for a wide body-weight range. The detection limits are compared for the scintillation and semiconductor detector. New semi-automatic spectrum evaluation method was developed for the scintillation detector.

Keywords: internal dose, whole-body-counting, incorporation, spectra-evaluation, efficiency-calibration

Az Energiatudományi Kutatóközpont egésztestszámláló berendezése idén, 2024-ben 60 éves. A cikk összefoglalja az elmúlt évek főbb fejlesztéseit. Az egésztestszámlálóba új HPGe detektor lett beépítve, amivel széles testtömeg-intervallumra kiterjedő hatásfok-kalibráció történt. Összehasonlítottuk a szcintillációs és félvezető detektorokkal elérhető kimutatási határokat. A szcintillációs detektorral felvett spektrumokhoz új, jól automatizálható kiértékelési eljárást dolgoztunk ki.

Kulcsszavak: belső sugárterhelés, egésztestszámlálás, inkorporáció, spektrumértékelés, hatásfok-kalibráció

BEVEZETÉS

Az Energiatudományi Kutatóközpont belső sugárterhelés meghatározására szolgáló egésztestszámláló berendezését 60 évvel ezelőtt, 1964-ben helyezték üzembe és azóta is folyamatosan működik [1]. Az évforduló alkalmat ad arra, hogy összefoglaljuk az elmúlt időszak eredményeit, fejlesztéseit.

Az egésztestszámlálóval évente több mint 100 mérést végeznek. A KFKI telephely azon dolgozói, akiknek munkája során a belső sugárterhelés lehetősége felmerül, rendszeresen ellenőrző mérésen esnek át, rutinszerűen évente, illetve inkorporáció gyanúja esetén soron kívül is.

Az egésztestszámlálóban 3 detektor van: 2 db NaI(Tl) szcintillációs detektor, egy az ágy felett, egy pedig alatta. Kristályméretük 6"×4". Az ágy felett emellett egy félvezető detektor is van. A félvezető detektor együtt mozog a szcintillációs detektorral, azonban ahhoz képest oldalra van beépítve. Emiatt az ágy oldalirányú mozgatása szükséges ahhoz, hogy a megfelelő detektor kerüljön a mérési pozícióba [2].

ÚJ HPGE DETEKTOR BEÉPÍTÉSE ÉS ANNAK KALIBRÁCIÓJA

2012-ben az egészszteszámlálóba új nagytisztaságú germánium félvezető (HPGe) detektor került beépítésre a korábbi meghibásodott detektor helyére. Az új detektor típus: Canberra GX3018 típusú, relatív hatásfoka 30%.

Az új detektor hatásfokkalibrációját flaskafantommal végeztük. A 2012-ben elvégzett kalibráció során két flaskakészletet használtunk.

A KFKI AEKI ^{152}Eu flaskafantom-készlet az Am – 241 / Eu – 152 – OMH-11105 jelű standard hígításával készült 1994-ben. Össztömege 100 kg. A készlet referencia időpontja 1994.01.01. 1 flaska aktivitása az alábbi táblázatban látható.

1. táblázat. Az 1994-es KFKI AEKI flaskafantom aktivitása (1 flaska)

nuklid	felezési idő	aktivitás (kBq)
^{241}Am	432.2 év	0.084
^{152}Eu	13.537 év	3.540

Csekély aktivitása miatt az ^{241}Am – hosszú felezési ideje ellenére – nem használható.

Az OSSKI-tól kölcsönkapott flaskafantom-készlet egy Eckert & Ziegler gyártmányú radioaktív hiteles anyagminta hígításával készült. Bizonylata szerint az alábbi radionuklidokat tartalmazza.

2. táblázat. Az OSSKI flaskafantom-készlet aktivitása

nuklid	felezési idő	aktivitás (kBq)
^{51}Cr	27.7 nap	32.27
^{57}Co	271.79 nap	0.77
^{60}Co	5.27 év	3.68
^{85}Sr	64.84 nap	4.81
^{88}Y	106.65 nap	7.58
^{109}Cd	462.6 nap	20.17
^{137}Cs	30.07 év	3.24
^{139}Ce	139.64 nap	1.01
^{241}Am	432.2 év	3.64

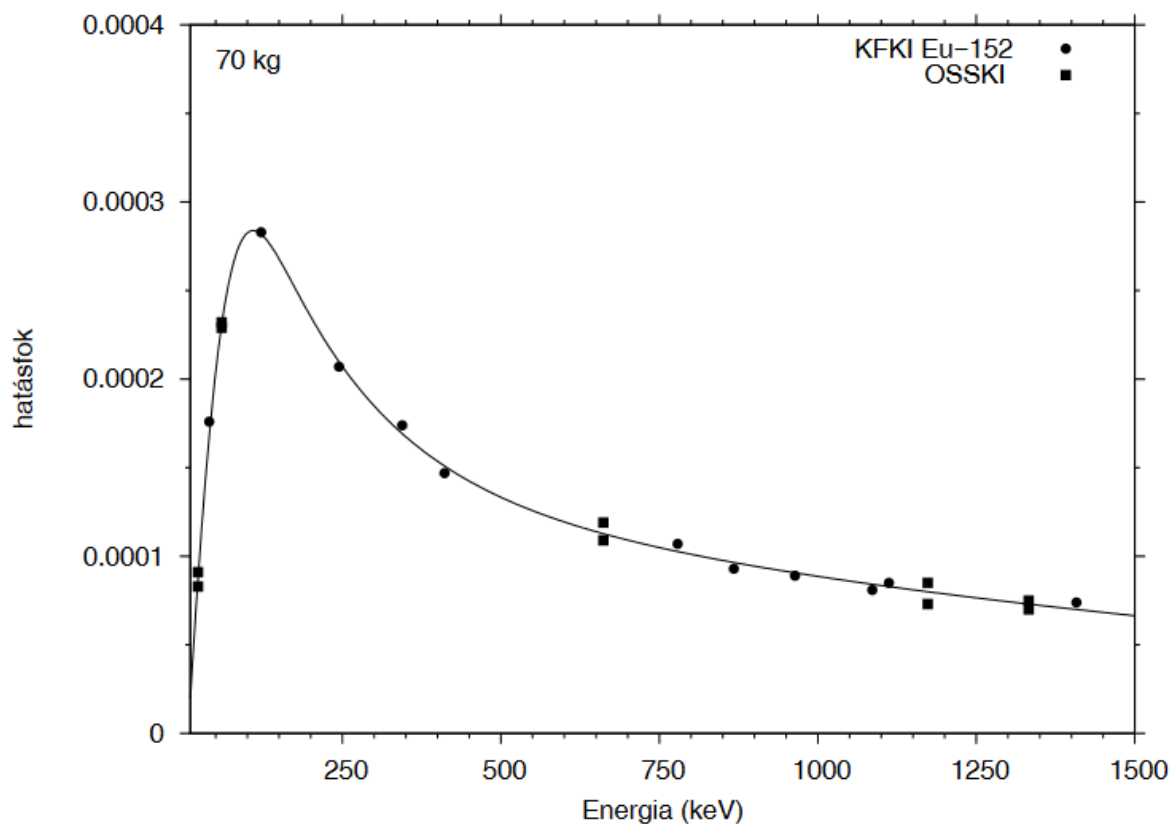
A megadott aktivitások a teljes – 90 kg-os – készletre vonatkoznak.

A készlet referencia időpontja 2010.09.01., azaz a mérés idején 2 éves volt A készítés óta eltelt idő alatt a rövidebb felezési idejű nuklidok már elbomlottak. Emiatt a kalibrációhoz csak a ^{60}Co , ^{109}Cd , ^{137}Cs és ^{241}Am radionuklidok voltak felhasználhatók. Bár a ^{57}Co felezési ideje kb. 3/4 év, a kezdeti aktivitás nagyon kicsi volt, ezért a mérésakor már nem volt kimutatható.

A kalibráló mérések fekvő „SCANNING END STOP” geometriában történtek. A mérési idő $T = 1293$ s volt. A jobb statisztikus pontosság miatt a OSSKI flaskafantommal a fenti, szokásos mérési idő kétszeresével $T = 2586$ s idővel is történtek mérések.

A hatásfok energiafüggése az alábbi ábrán látható. Az ábrákon eltérő módon vannak jelölve a két fantomból származó pontok. Bár a két fantom a felhasznált flasksak különbözősége miatt kismértékben eltér egymástól, azt feltételezzük, hogy a belőlük kapott hatásfokok eltérése elhanyagolható lesz. Ezt a feltételezésünket alátámasztja, hogy a két fantomból kapott pontok azonos függvényre illeszkednek (1. ábra). A két különböző radioaktív hiteles anyagminta

hígításával készült kalibráló készlettel kapott hatásfokok egy görbére illeszkedése egyben a bizonylatban foglalt aktivitásokat is kölcsönösen ellenőrzi.



1. ábra. A Canberra GC3018 HPGe detektor hatásfoka 70 kg-os testtömeg esetén

Korábban a kalibráló mérések 50–100 kg testsúlyokra készültek, 10 kg lépésekben, de erre ekkor nem volt elegendő kapacitás. Azonban szükség lenne hatásfok-kalibráció 100 kg feletti testsúlyok esetére is, mivel a vizsgálatok során rendszeresen kell ilyen testsúlyú embereket is mérni.

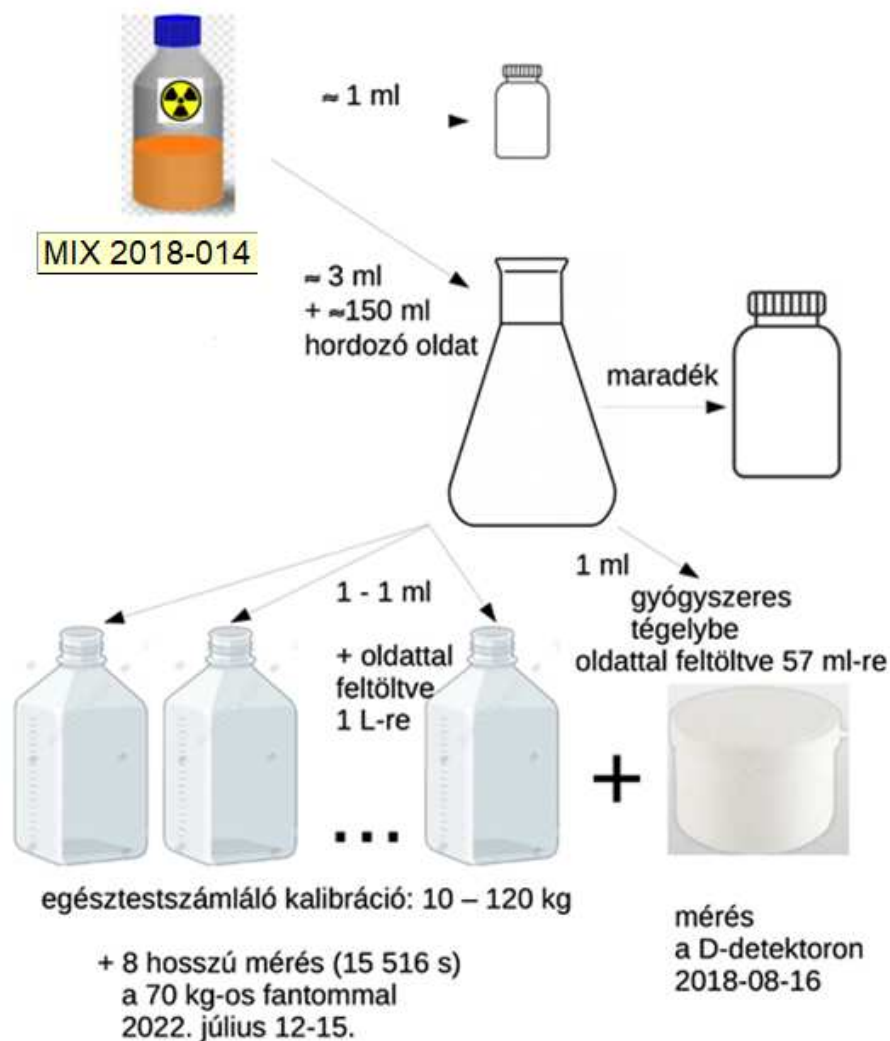
Kalibráció 2018-2022-ben

A detektor újabb kalibrációjához új flaskakészlet készült, a MIX 2018-014 jelű a Budapest Főváros Kormányhivatala Metrológiai és Műszaki Felügyeleti Főosztály által biztosított radioaktív hiteles anyagmintából. A hiteles anyagminta műbizonylatban szerinti aktivitása az alábbi táblázatban olvasható.

3. táblázat. A MIX 2018-014 jelű radioaktív hiteles anyagminta aktivitása

MIX 2018-014	A (kBq)
²⁴¹ Am	396,1
¹⁵² Eu	502,4
¹³³ Ba	484,5
⁶⁰ Co	980,8
¹³⁷ Cs	696,0
ref. date:	2018-06-01

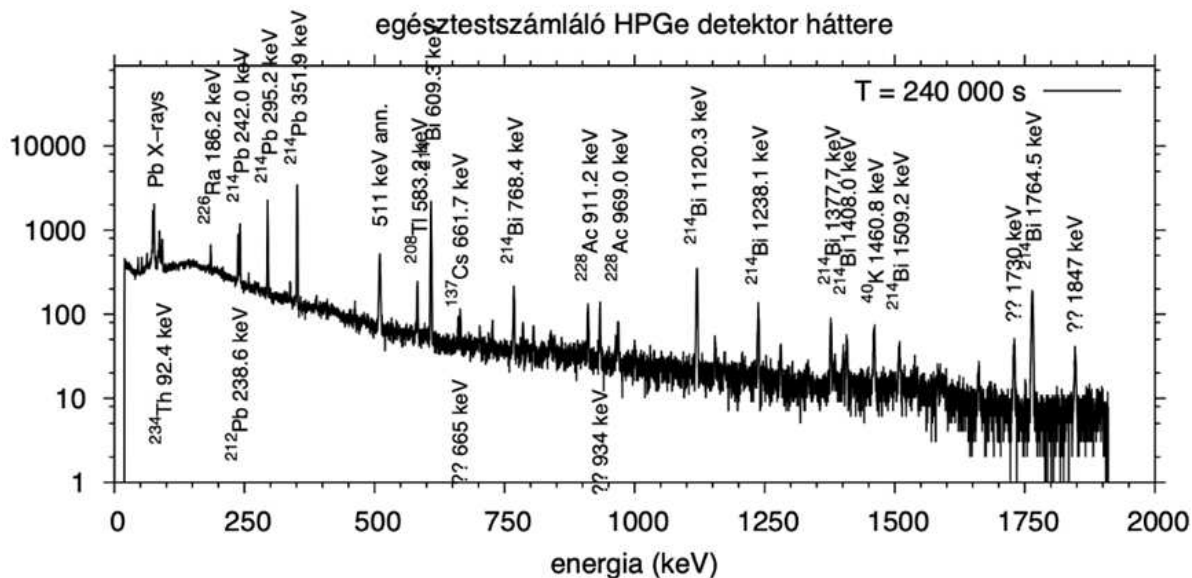
A minta hígításával 120 db 1 literes flaska lett megtöltve. A hígítási folyamatot az alábbi (2. számú) ábra szemlélteti.



2. ábra. A MIX 2018-014 radioaktív hiteles anyagminta hígítása

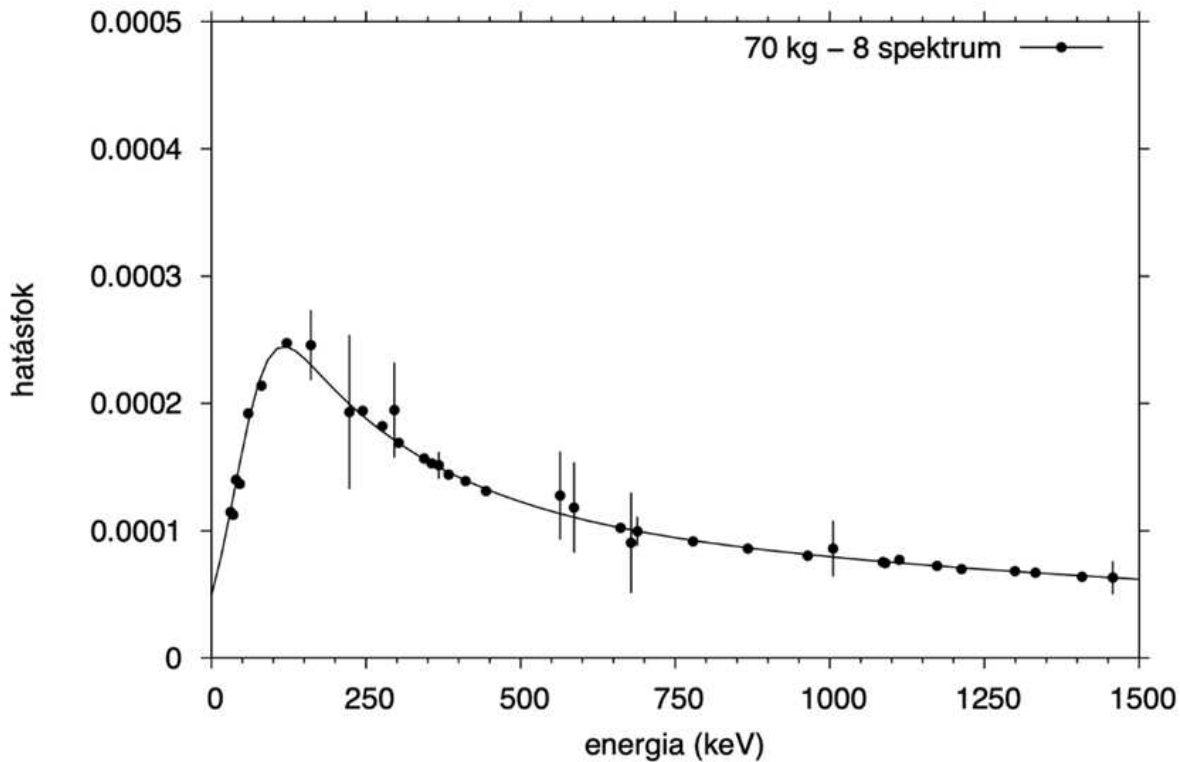
A méréseket változatlanul fekvő scanning-end-stop geometriában végeztük. A flaskákból 10 kg-tól 120 kg-ig állítottunk össze kalibráló fantomokat, 10 kg lépésben. A jobb mérési statisztika érdekében a 70 kg-os fantommal a szokásos scanning-end-stop mérést 1/12-ed részére lelassítva is végeztünk méréseket. Ezt 8-szor megismételtük, így az összeidő 124 128 s lett (1,44 nap).

A megfelelő háttérlevonás érdekében egy hétvégés, hosszú mérési idejű háttérspektrumot is felvettünk: $T = 240\,000\text{ s}$ (2,78 nap). Ebben csak egyetlen mesterséges radionuklid látható: ^{137}Cs (3. ábra). A szokásos 1293 s-es mérés alatt ez a csúcs <2 beütés lenne.



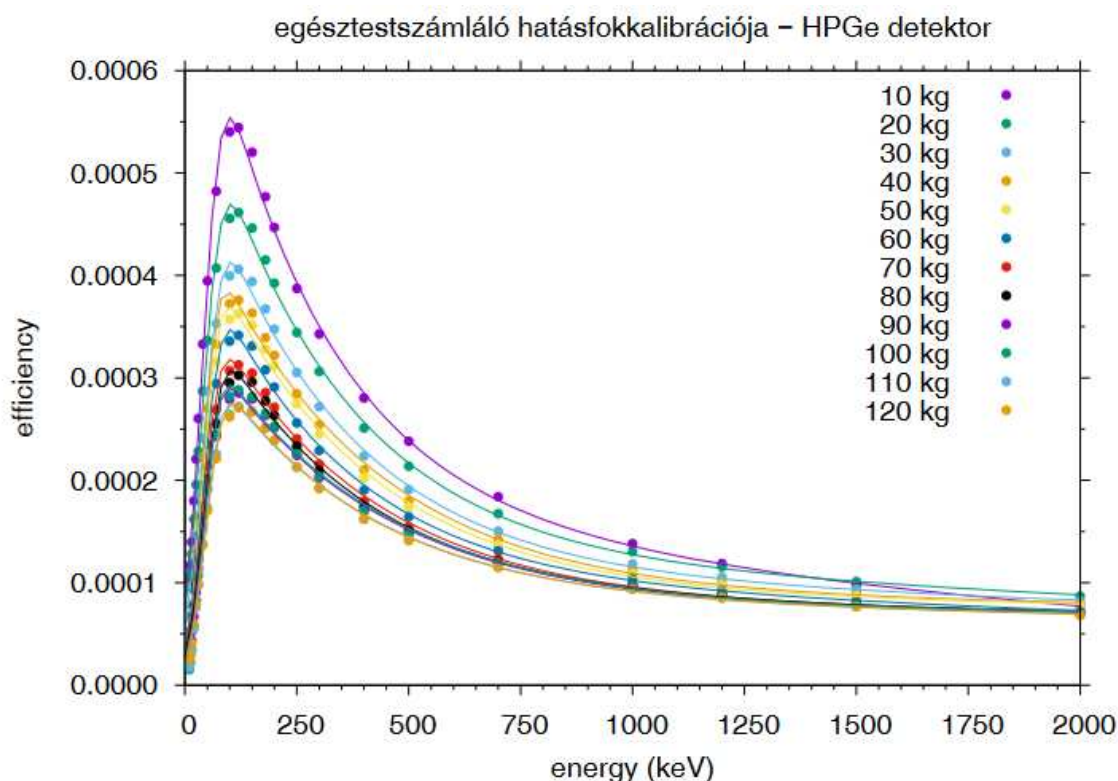
3. ábra. Az egésztestszámláló HPGe detektorának háttérspektruma

A 70 kg-os fantommal elvégzett hosszú idejű méréssel a kalibráló minta 5 nuklidjából 38 gamma-vonalat lehetett felhasználni a kalibrációhoz a 31 keV – 1457 keV energia-intervallumban (4. ábra).



4. ábra. A hosszú idejű kalibráló spektrumok alapján szerkesztett hatásfokgörbe

A 10 kg – 120 kg testtömegekre felvett hatásfokgörbék az alábbi (5. számú) ábrán láthatók.



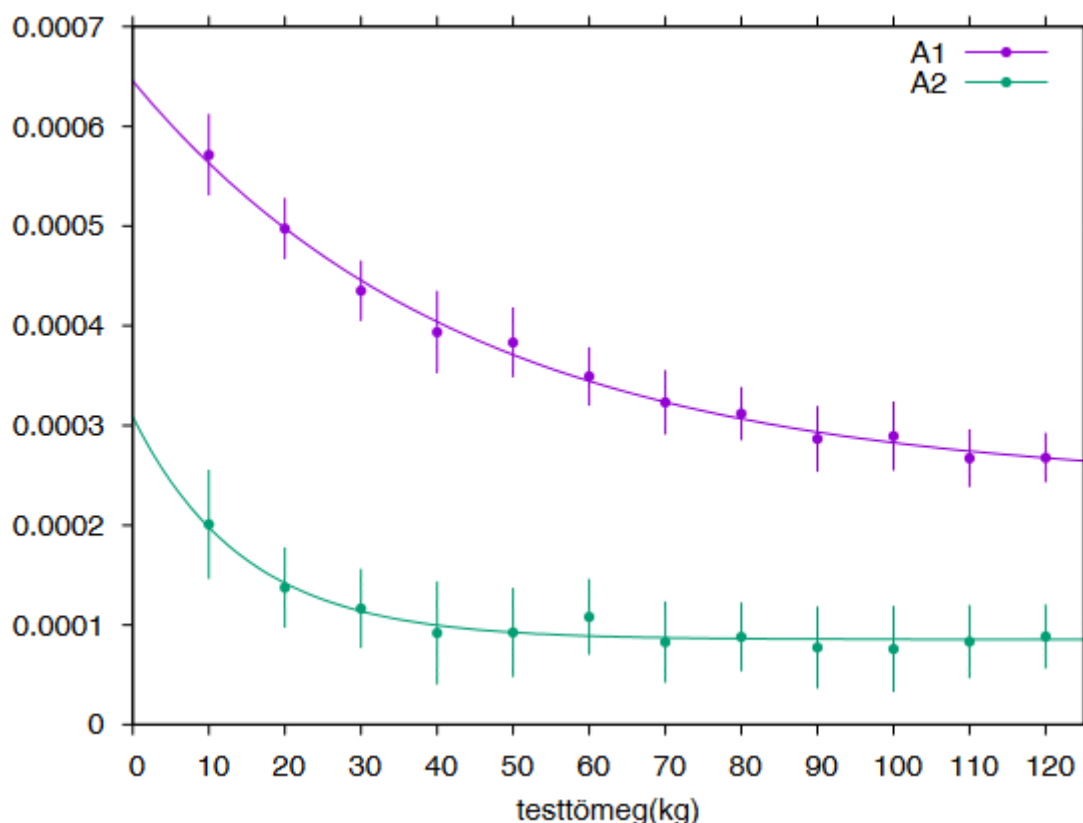
5. ábra. Az egésztestszámláló HPGe detektorának hatásfoka 10 kg – 120 kg testtömegekre

A detektor hatásfokának energiafüggését az alábbi függvénnyel írjuk le:

$$\varepsilon(E) = \operatorname{erfc}\left(-\frac{E - E_0}{E_\Lambda}\right) \times \left(A_1 \cdot \exp\left(-\frac{E}{E_1}\right) + A_2 \cdot \exp\left(-\frac{E}{E_2}\right)\right)$$

A hatásfokot leíró függvény paramétereinek testtömegtől való függését empirikus úton közelítjük. Ezáltal bármilyen testtömeg és fotonenergia esetén meg lehet határozni a hozzá tartozó hatásfokot.

A félvezető detektor esetén rutin mérések kiértékelése általában a Genie-2000 programmal történik [5]. Sajnos a Genie-2000 nem teszi lehetővé, hogy a hatásfokfüggvény paramétereit közvetlenül bevigyük a programba. Emiatt erre egy „kerülő” eljárást dolgoztuk ki, amivel a Genie-200 programot rá lehet venni arra, hogy az általunk megadott hatásfokokkal számoljon. Ennek részletei a „Környezeti minták gamma-spektrometriás vizsgálata” című ismeretfelújító előadásban és cikkben vannak leírva.



6. ábra: A hatásfokot leíró függvény paramétereinek függése a testtömegtől

A SZCINTILLÁCIÓS ÉS A FÉLVEZETŐ DETEKTOR KIMUTATÁSI HATÁRÁNAK ÖSSZEHAJONLÍTÁSA

A félvezető detektorra elvégzett kalibráció és a szcintillációs detektor korábbi kalibrációját ellenőrző mérés, illetve a háttérpektrumok alapján meghatároztuk a két detektor kimutatási határait néhány gyakorlatban lényeges radionuklidra.

A gyakorlati szempontból lényeges radionuklidok többségére a félvezető detektorral valamivel jobb kimutatási határ érhető el, mint a szcintillációssal, mivel a félvezető detektor jobb energiafelbontása és alacsonyabb háttére kompenzálja a lényegesen kisebb térfogatot.

A ^{40}K esetén valamivel rosszabbnak bizonyult a félvezető detektor kimutatási határa a szcintillációshoz képest. Ez elsősorban a háttérlevonás miatt van: mivel ^{40}K a környezetben és így a detektor háttérében is megtalálható, a kisebb térfogatú detektor esetén a kisebb beütésszámok különbsége miatt lehet a különbség bizonytalansága jelentősebb, ami korlátozza a kis aktivitások megbízható detektálását. Az emberi szervezetben szokásán előforduló – jellemzően 3–5 kBq – ^{40}K esetén ez azonban nem okoz problémát, az megbízhatóan kiértékelhető a félvezető detektorral is.

Bár a kimutatási határok összehasonlítása alapján látható, hogy az új félvezető detektor használata esetén – a ^{40}K előbb tárgyalt esetét kivéve – nem nagyon van olyan gyakorlati szempontból lényeges radionuklid, aminél a szcintillációs detektor jobb eredményt adna, mint

a félvezető. Azonban a szcintillációs detektor előnye, hogy nem igényel hűtést, így abban az esetben is üzemképes marad, ha cseppfolyós nitrogén valamiért nem állna rendelkezésre.

4. táblázat: A szcintillációs és a félvezető detektor kimutatási határai

Nuklid	Energia (keV)	Kimutatási határ (Bq)		HPGe / NaI arány
		NaI	HPGe	
^{22}Na	1274,5	94	83	89%
^{57}Co	122,1		93	
^{60}Co	1173,2	99	66	66%
$^{99\text{m}}\text{Tc}$	140,5		79	
^{125}I	27,4			
^{131}I	364,5	145	98	68%
^{137}Cs	661,7	120	92	77%
^7Be	477,6	1101	805	73%
^{40}K	1460,8	874	2321	265%
^{192}Ir	316,5	153	76	50%
^{54}Mn	834,9	104	63	60%
^{65}Zn	1115,5	187	153	82%

SPEKTRUMÉRTÉKELŐ ELJÁRÁS AZ EGÉSZTESTSZÁMLÁLÓ SZCINTILLÁCIÓS DETEKTORÁHOZ

A szcintillációs detektor által adott spektrum jellemzője, hogy a mérsékelt energiafelbontás miatt a csúcsok átlapolnak egymással. Ez megnehezíti a csúcsok egyenkénti kezelését és csúcs alatti folytonos háttér egyszerű levonását, ezzel a nettó csúcsterület meghatározását.

Az új félvezető detektor használata mellett is a szcintillációs detektor továbbra is használatban maradt, így ennek spektrumainak kiértékelésére is kell egy megbízható kiértékelési eljárás, ami lehetőleg kevés emberi erőforrás mellett biztosítja a spektrumok értékelését és azoknak az eseteknek a kiszűrését, amikor inkorporáció gyanúja merül fel és amivel részletesebben foglalkozni kell.

A most ismertetett eljárásban egy gyakorlatban könnyen alkalmazható matematikai modellel írja le a NaI detektorral felvett spektrumokat, amelyből a további feldolgozáshoz, értékeléshez szükséges paraméterek könnyen kinyerhetők.

A folytonos háttér leíró függvény:

$$BG(i) = \operatorname{erf}\left(\frac{i - i_0}{A_0}\right) \times \left(A_1 \times \exp\left(-\frac{i}{b_1}\right) + A_2 \times \exp\left(-\frac{i}{b_2}\right)\right)$$

Az exponenciálisan lecsengő folytonos háttér egy kb. 100 keV energiáig terjedő gyorsabb lecsengésű szakaszból és egy e feletti lassabban lecsengő szakaszból áll. Ez indokolja a második tényezőben a két exponenciális tag alkalmazását.

A csúcsokat leíró függvény:

$$p_j(i) = a_j \times \exp\left(-\frac{(i - c_j)^2}{2 \cdot \sigma_j^2}\right)$$

A teljes spektrum a folytonos háttérből és az ezekre rátevődő csúcsokból áll:

$$f(i) = BG(i) + \sum_{j=1}^k p_k(i)$$

A leírt függvénnyel való illesztés után a spektrumok további feldolgozásához szükséges adatok az illesztett paraméterekből számíthatók ki. A csúcsterület: $AREA = 2,5066 \times a_j \times \sigma_j$,

A detektor háttér spektrumában a természetes radionuklidok, a ^{40}K , ^{228}Ac , ^{214}Pb és ^{214}Bi – utóbbi kettő radon-bomlástermékek – gamma-vonalai, valamint az 511 keV-es annihilációs csúcs láthatók. Az alkalmazott modellbe az alábbi gamma-vonalakat vettük fel.

^{40}K	^{214}Pb	^{214}Bi	^{228}Ac	annihilációs csúcs
1460.8 keV	351.9 keV	609.3 keV	911.2 keV	511.0 keV
	295.2 keV	1764.5 keV	969.0 keV	
	242.0 keV	1120.3 keV	338.3 keV	
		1238.1 keV	964.8 keV	

Az azonos radionuklidhoz tartozó gamma-vonalakat egy vonalcsoporthoz fogtam össze, melynek tagjai között az intenzitásarányt rögzítjük. Az intenzitásarányokat a ^{214}Bi és a ^{214}Pb esetén egy hosszú idejű háttér méréséből vettük. A ^{228}Ac esetén csak a 911,2 keV-es csúcs volt megbízhatóan megilleszthető. Emiatt többi csúcsának intenzitását a táblázatokról vett vonalgyakorisággal vettük, korrigálva a detektor hatásfokával a kérdéses energián.

A spektrumot leíró függvénynek így – alaphelyzetben – 14 szabad paramétere van:

- a folytonos háttér 6 paramétere: A_0 , i_0 , A_1 , A_2 , b_1 , b_2 ;
- az energiakalibráció paraméterei: Zero, Gain;
- az energiafelbontás paraméterei: s_0 , s_1 ;
- a vonalcsoporthoz tartozó intenzitásukra jellemző a_i paraméterek (4 vonalcsoporthoz → 4 db).

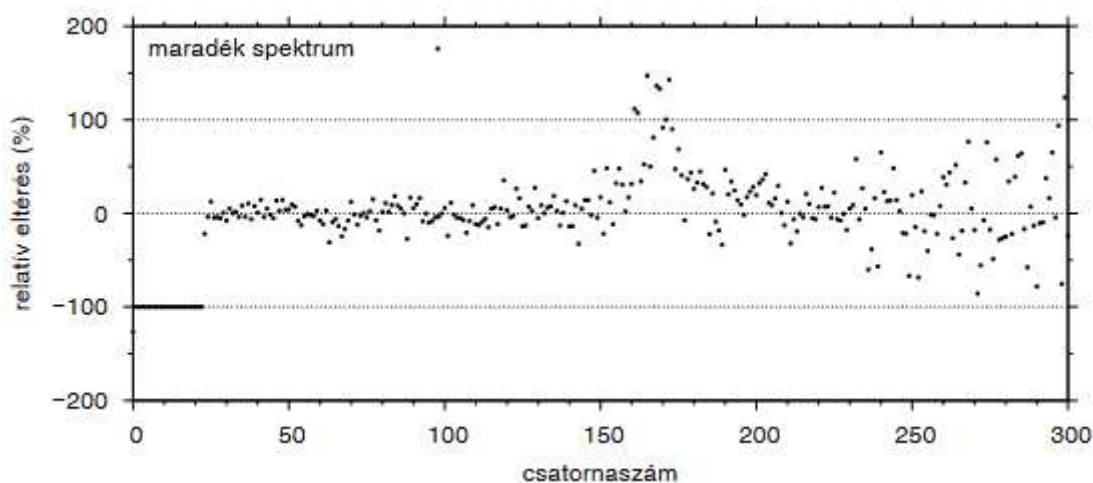
A fenti függvényben A_1 , A_2 és a_i paraméterek lineárisak, míg a többi nem. A spektrumillesztések a Levenberg-Marquardt algoritmus alapján a gnuplot [4] programmal történtek.

A háttérképzéssel szemben személyek méréseknél a háttérspektrumhoz adódnak hozzá az inkorporált radionuklidok gamma-vonalai. Normál esetben csak ^{40}K szokott előfordulni, így a hozzá tartozó 1460.8 keV-es csúcs növekedik meg a háttérhez képest. A spektrum illesztésénél új gamma-vonalaz az illesztési modellbe nem kell felvenni. Amennyiben a vizsgált személyben más, inkorporált gamma-sugárzó radionuklid van mérhető mennyiségben, akkor annak gamma-vonalai megjelennek a spektrumban. Erre a következő részben látunk példát.

Az illesztés elvégzése után a program előállítja a mért spektrum és az illesztés különbségét, azaz a maradék-spektrumot. Ha az csak a Poisson-szórásból származó véletlen ingadozást mutatja, akkor az illesztés elfogadható és a spektrumban valószínűleg nincs olyan radionuklid, ami nincs benne az illesztési modellben. Ha azonban modellben nem szereplő gamma-sugárzó van jelen, akkor a maradék-spektrumban határozott eltérés keletkezik, amit elég könnyű akár szemre, akár az illesztés jósága alapján matematikai úton kiszűrni.

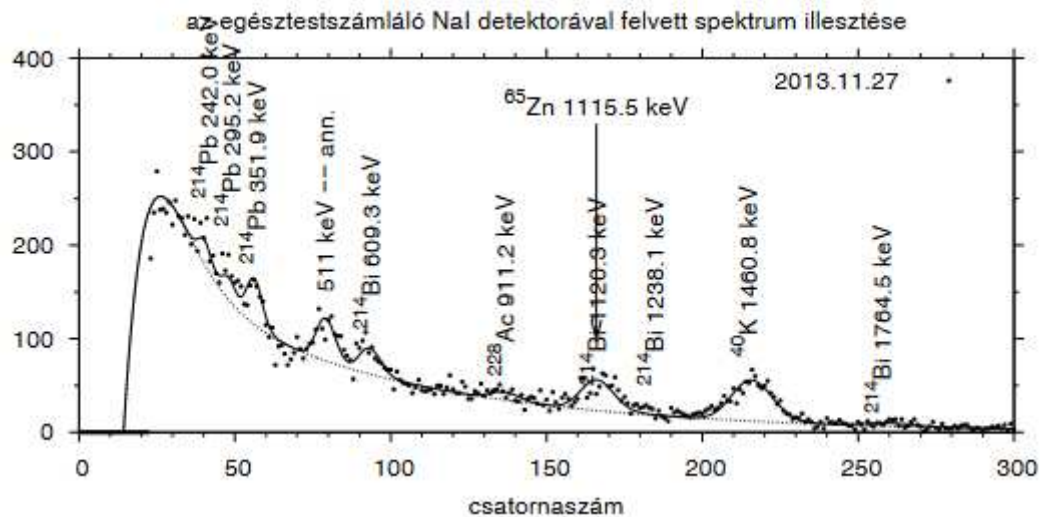
Egy ^{65}Zn inkorporáció esete

A munkakörüknél fogva belső sugárterhelés kockázatának kitett dolgozók éves szűrővizsgálata keretében mért egyik személy spektrumának értékelésekor feltűnt, hogy a ^{214}Bi 1120,3 keV-es csúcsa a szokások vonalarányokkal nem illeszthető meg és a maradék-spektrumban egy csúcs keletkezik.



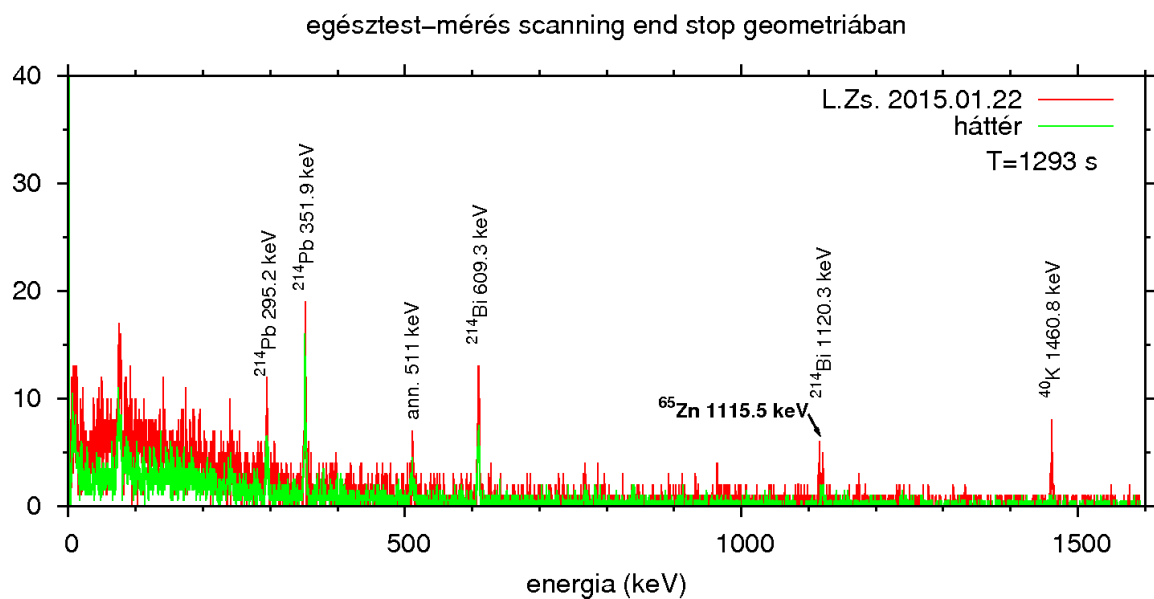
7. ábra: Maradék-spektrum az illesztési modellben nem szereplő radionuklid esetén

A szcintillációs detektor korlátozott energiefelbontás miatt az csupán az energiából a nuklid nem azonosítható egyértelműen. A vizsgált személy által végzett munkák jellege alapján a szóba jöhető radionuklidok közül a ^{65}Zn a legvalószínűbb. Ennek 1155,55 keV-es csúcsát betéve a modellbe a maradék spektrumban levő csúcs eltűnik és az illesztés mindenütt megfelelő lesz.



8. ábra: A szcintilláció detektorral felvett spektrum illesztése ^{65}Zn inkorporáció esetén

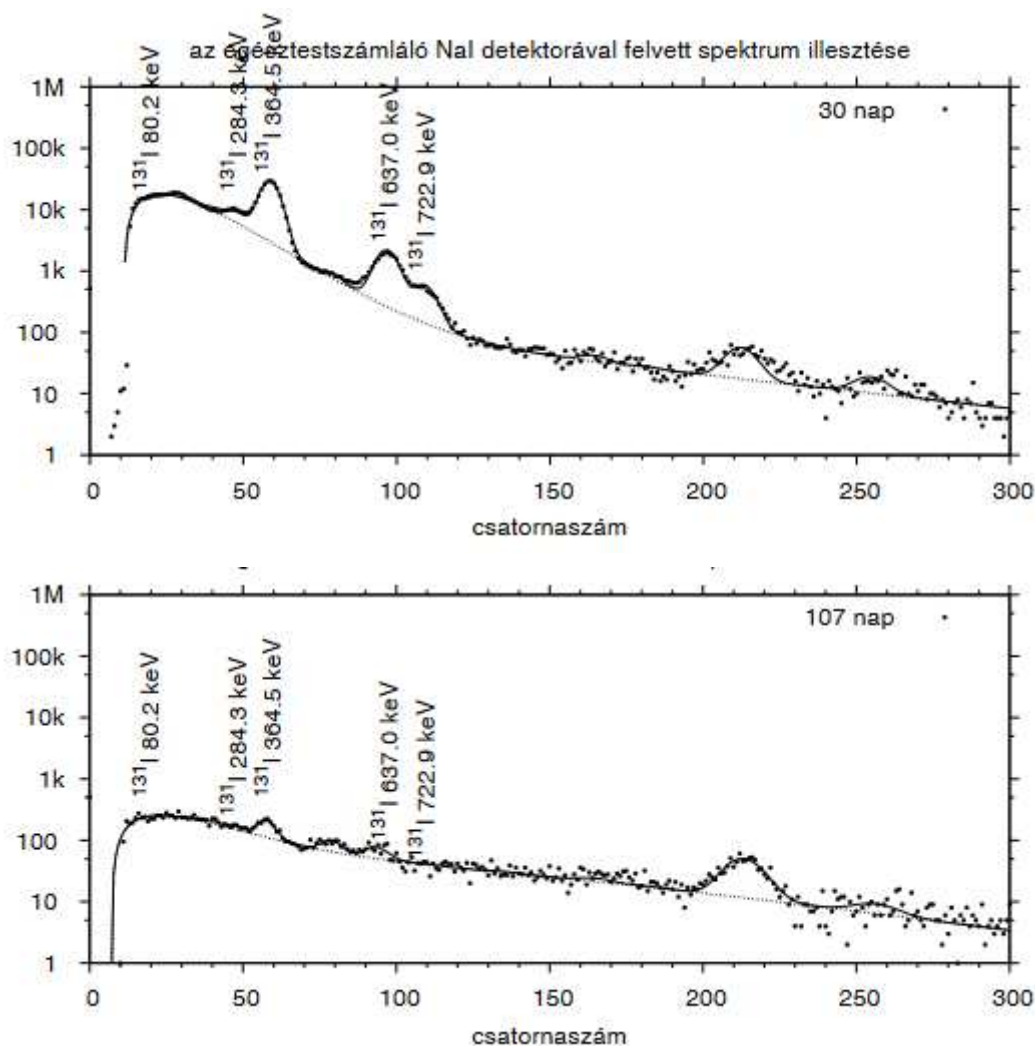
A vizsgált személynél a megismételtük a mérést félvezető detektor alkalmazásával, amely igazolta mind az azonosított nuklidot, mind a meghatározott aktivitást.



9. ábra: ^{65}Zn inkorporáció félvezető detektorral mérve

Mérés radioizotópos terápia után

2013-ban lehetőségünk nyílt egy radiojódos pajzsmirigy-kezelésen átesett személy többszöri egésztestmérésére, aki önként jelentkezett a méréssorozat alanyának. A kezelés során egyszeri alkalommal 2,4 GBq ^{131}I izotópot kapott tabletta formájában. A kezelése utáni 30., 36., 50., 57., 69., 107. napon végeztünk méréseket, egészen a ^{131}I kimutatási határ alá csökkenéséig.



10. ábra: ^{131}I terápián átesett személy spektrumai a beadás után 30 és 107 nappal

Itt a korábbi esetektől lényegesen nagyobb aktivitás került a szervezetbe, ennek megfelelően a mesterséges radionuklidtól jövő intenzitás lényegesen nagyobb, mint a természetes radionuklidoktól eredő.

A detektor pályája mentén változó holtidő hatása

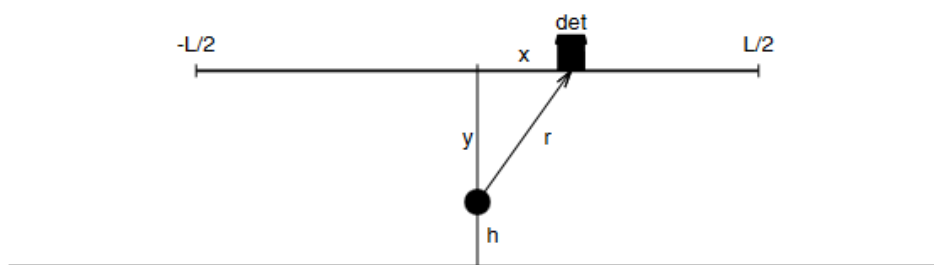
A környezetellenőrző mérések esetén és általában a legtöbb gamma-spektroszkópiával végzett mérésünk során a detektor élőideje (LT) szokott állandó értékre beállítva lenni. Így a valós idő (RT) valamivel hosszabb ennél, a holtidőtől függően. Az egésztestszámlálónál más a helyzet: itt a detektor mozgása valós időben meghatározott program szerint történik, így a valós idő van ezzel megegyezőre állítva. Az élőidő a holtidő miatt ennél valamivel rövidebb lesz. Mivel az egésztestszámlálóval végzett mérések során a holtidő jellemzően igen kicsi, így az eltérés nem jelentős.

Tegyük fel, hogy a mért személy tartalmaz egy adott szervet érintő (helyi) inkorporációt, pl. belégzés útján a tüdőben rakódott le valami. Amikor a detektor az inkorporációt tartalmazó testrész felett jár, megnövekszik a holtideje. Így itt az élőidő csökken, a detektált beütésszám

emiatt kisebb lesz. A teljes mérés holtidején ez nem feltétlenül tükröződik, mert az inkorporációtól távolabbi testrészeknél a holtidő a szokásos érték közelébe csökken és a végén a teljes mérési időre vetített átlagos holtidőt látjuk. Érdekes meggyőződni róla, hogy az egésztestszámlálás során előfordulhatnak-e elő olyan aktivitások, amikor ez a jelenség számottevő lehet.

Az egésztestszámlálásnál szokásosan alkalmazott fekvő scanning-end-stop geometriát vizsgáljuk. A vizsgált személy vagy fantom az ágyon fekszik. A detektor az ágy felett helyezkedik el H magasságban. A detektor a mérés során L hosszúságú pályán mozog v sebességgel.

A fantom belsejében helyezkedik el – az egyszerűsítés érdekében – egy pontszerűnek tekintett sugár- forrás, az ágy síkja felett h magasságban. Számoljunk a következőkben azzal, hogy a sugárforrás a detektor pályájának felénél van ($x = 0$).



11. ábra: mérési geometria mozgó detektor esetén

A sugárforrás által kibocsátott sugárzás intenzitása a detektor helyén (részecskefluxus) a sugárforrástól való távolság négyzetével fordítottan arányos: $I \propto 1/r^2$. Az r távolságot a Pitagorasz-tétellel kifejezve az x helyzetben levő detektor által észlelt intenzitás:

$$I(x) = I_{\max} \times \frac{1}{1 + \frac{x^2}{(H-h)^2}}$$

A detektor által észlelt beütésszám a detektor L hosszúságú úton történő mozgása alatt:

$$Y = \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} I(x)(1 - DT(x))dt = \frac{1}{v} \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} I(x)(1 - DT(x))dx$$

A detektor teljes előideje az L hosszúságú úton történő mozgása alatt:

$$LT = \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} (1 - DT(x)) \frac{dx}{v} = \underbrace{\frac{L}{v}}_{RT} - \underbrace{\frac{1}{v} \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} DT(x)dx}_{\langle DT \rangle}$$

Az első tag a mérés valós ideje (amennyi idő alatt a detektor megteszi az L hosszúságú pályát), míg a második tag a detektor pályájára átlagolt holtidő. Ezt a holtidőt fogja mutatni az analízátor összspektrum gyűjtése esetén.

Összehasonlítjuk a idealizált holtidő nélküli detektor és a (2) és (3) képletek alapján véges holtidővel rendelkező detektor által adott időegységre jutó beütésszámokat. Az egyszerűség kedvéért számoljunk azzal, hogy a holtidő egyenesen arányos az intenzitással és a detektor alatti pozícióban ($x = 0$ cm) a sugárforrás 30% holtidőt okoz.

Ekkor a teljes mérési időre átlagolt holtidő 12% lesz (a pálya közepén 30%, a két végén 3%). A (2) és (3) képletek alapján az integrálokat numerikusan kiszámolva a (4) képletből a valódihoz képest 7%-kal kisebb aktivitást kapunk. Ez a csökkenés még belefér az egésztestszámlálótól elvárható mérési pontosságba, mivel más bizonytalansági tényezők is okoznak hibákat.

Ez a számítás a KFKI egésztestszámlálójában használt nem kollimált detektor esetére vonatkozik, ahol a detektor, így a számunkra lényeges szögtartományban az irányfüggése nem számottevő. Más a helyzet, ha a detektor kollimált, azaz a ferde szögben beeső fotonokra árnyékolva van. Tegyük fel, hogy az - egyébként azonos tulajdonságokkal bíró detektor – csak egy 30° félnyílásszögű kúpban lát előre, azaz lefelé. Ekkor a teljes mérési időre átlagolt holtidő 5%-ra csökken, mivel a pálya két végén szinte 0 lesz ekkor a holtidő, míg a pálya közepén ekkor is 30%. Az aktivitás 23%-kal lesz kisebb a valósnál. Ez már jelentősebb csökkenés, mint az előbbi nem kollimált eset.

ÖSSZEGZÉS

Bár az elmúlt időszakban a sugárvédelem és dozimetria területén a mérési módszerek fejlesztésére rendelkezésre álló, elsősorban emberi erőforrás megcsappant, az éppen rendelkezésre álló létszámmal igyekeztünk egyrészt a fennálló mérési igényeknek eleget tenni, másrészt a gyakorlatban felmerült problémákra és kihívásokra válaszolva a mérési és kiértékelési módszereken szerény mértékben fejleszteni. Az új fejlesztések azonban hamar átkerültek a gyakorlatba, hiszen a saját munkánkat könnyítjük meg ezzel. Ugyanakkor a megrendelők igényeire is megbízhatóbb, pontosabb válaszokat tudunk adni, különöseb ha az alkalmazott módszerek saját fejlesztéseink, aminek részleteit ismerjük, és nem fekete-dobozként használjuk.

IRODALOM

- [1] Andrási Andor: Belső sugárterhelés meghatározása egésztest-számlálással. Fizikai Szemle, 2006/9.
- [2] Andrási Andor, Belezna Ferencné, Urbán János: A belső sugárterhelés egésztestszámlálós meghatározási módszerének továbbfejlesztése a KFKI-ban
- [3] Radioaktív izotópok emberi szervezetben történő meghatározására létesített egésztestszámlálós mérőrendszer továbbfejlesztése, Egységes mérő és kiértékelő

szoftver kifejlesztése és az új mérőrendszer kalibrálása, Beszámoló jelentés KFKI Atomenergia Kutatóintézet, Budapest, 1994. november

[4] G N U P L O T Version 4.6 Thomas Williams, Colin Kelley et. al. – <http://www.gnuplot.info>

[5] Genie 2000 Gamma Acquisition & analysis V3.2.1, Aug 26, 2009, Canberra Industries

Készült a SOMOS Alapítvány támogatásával.

ELMÉLETI MEGFONTOLÁSOK A RADIOAKTÍVHULLADÉK-TÁROLÓK HOSSZÚ TÁVÚ HATÁSAINAK ÉRTÉKELÉSÉHEZ A BIOSZFÉRÁBAN

BÁTAAPÁTI NRHT MUNKA ALAPJÁN

Eged Katalin^{*1} és Bóthi Zoltán²

¹UniRad Kft, 8200 Veszprém, Kádár u 8.

²WSP Hungary Consulting Zrt., 1021 Budapest, Hűvösvölgy út 54.

* katalin.eged@mail.com

A kézirat beérkezett: 2024.03.27.

Közlésre elfogadva: 2024.05.29.

A new methodological approach is presented for the biosphere modeling of radioactive waste repositories. Nuclear power plants operate in many places around the world, and the disposal of the radioactive wastes produced must be solved by the operator, at the national level. The safety assessment is one of the basic documents for the establishment and operation licensing of the national radioactive waste repositories, a subsystem of which is the biosphere model. The complex task is supported internationally by the International Atomic Energy Agency (IAEA) with methodological guidelines and databases. Hungary follows the theoretical modeling recommendations, taking into account the local (Bátaapáti) characteristics, in accordance with the international practice of the 2000s, Hungary also used Mendeleev's periodic system of chemical elements as a basis for determining the parameters of the model. From 2020, however, we used another, completely new approach, namely the "Hydrogeochemical Periodic Table (HPT)" analogy. The basis of the analogy is the relative behavior of chemical elements in different valence chemical forms that appear in natural conditions. The method has been accepted by PURAM and the national authorities, and its international competition is in progress. Our results show that the HPR may be a more realistic approach in the future than the elemental analytical analogy. Due to the long migration routes within the geosphere, only conservative isotopes with long half-lives and some uranium isotopes and their daughter elements can reach the biosphere and cause a significant radiological effect on the plant/animal and human population. Uncertainty analyses show that calculated effective doses are expected to be limited to a single order of magnitude, which is relatively low for the time frames considered.

Keywords: GoldSim, Radionuklidok, Koncepcionális modell, periódusos rendszer, Monte-Carlo szimuláció, HPR

Új módszertani megközelítést mutatunk be a radioaktív hulladék-tárolók bioszféra-modellezésben. A világban számos helyen működnek atomerőművek és a termelődött radioaktív hulladék elhelyezését az üzemeltetőnek kell megoldani, nemzeti szinten. A biztonsági értékelés a nemzeti radioaktív hulladék-tárolók létesítési és üzemeltetési engedélyezésének egyik alapidokumentuma, melynek egy alrendszere a bioszféra modell. Az összetett feladatot a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség (NAÜ) nemzetközi szinten támogatja módszertani irányelvekkel és adatbázisokkal. Magyarország követi az elméleti modellezési ajánlásokat, figyelembe véve a helyi (Bátaapáti) sajátosságokat, a 2000-es évek nemzetközi gyakorlatának megfelelően Magyarország is az Mengyelejev-féle kémiai elemek periódusos rendszerét vette alapul a modell paramétereinek meghatározásában. 2020-tól, azonban egy másik, teljesen új megközelítést alkalmaztunk, mégpedig a "hidrogeokémiai

periódusos rendszer (HPR)" analógiáját. Az analógia alapja a természetes körülmények között megjelenő, különböző vegyértékű kémiai formákban található kémiai elemek egymáshoz viszonyított viselkedése. A módszert az RHK és a hazai hatóságok elfogadták, nemzetközi megméréstetése folyamatban van. Eredményeink azt mutatják, hogy a HPR realizistikusabb megközelítés lehet a jövőben, mint az elemanalitikus analógia. A geoszférán belüli hosszú migrációs útvonalak miatt csak a hosszú felezési idejű konzervatív izotópok és egyes uránizotópok és leányelemeik juthatnak el a bioszférába, és okozhatnak jelentős radiológiai hatást a növény/állat és emberi populációra. A bizonytalansági elemzések azt mutatják, hogy a számított effektív dózisok várhatóan egyetlen nagyságrendre korlátozódnak, ami viszonylag alacsony a figyelembe vett időkeretekhez képest.

Kulcsszavak: GoldSim, Radionuklidok, Koncepcionális modell, periódusos rendszer, Monte-Carlo szimuláció, HPR

BEVEZETÉS

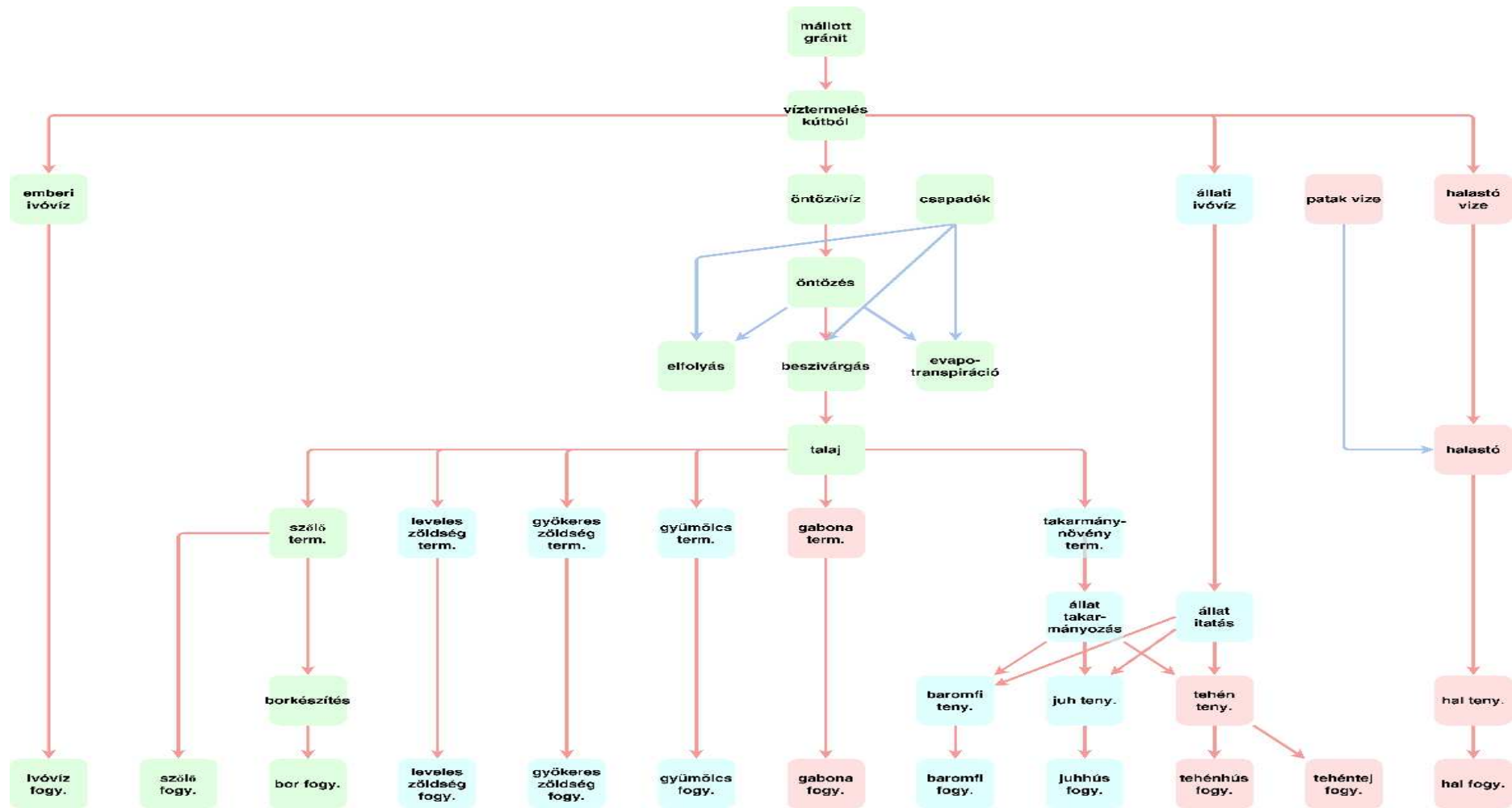
A radioaktív hulladékok biztonságos elhelyezése az egyik legnagyobb probléma az atomenergia-iparban. Mivel számos országban nemzeti programok vannak folyamatban a kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok (Low and Intermediate Level Waste, LILW), valamint a nagy aktivitású radioaktív hulladékok (High Level Waste, HLW) és a kiégett nukleáris fűtőelemek (Spent Nuclear Fuel, SNF) radioaktív hulladék-tárolóinak tervezésére, építésére és üzemeltetésére, nemzetközi szervezetek módszertani megközelítéseket dolgoznak ki a kölcsönhatásban lévő folyamatok és jellemzőik korlátozott ismereteire és megértésére, valamint a helyszínek lehetséges hosszú távú fejlődésével kapcsolatos bizonytalanságból adódó problémák megoldására. A hosszú távú (végleges lezárást követő) biztonsági értékeléseknél alkalmazott egyik elfogadott megközelítés a Total System Performance Assessment (TSPA) modellezés, amely a hulladék elhelyezési rendszer és a bioszféra minden részét hasonlóan leegyszerűsített formában veszi figyelembe, hogy számszerűsített radiológiai kockázatokat származtasson az élővilág vonatkozásában. TSPA modellt fejlesztettünk ki GoldSim környezetben. A GoldSim olyan modellezési környezetet biztosít, amelyben a folyamatos folyamatok és a pillanatnyi események egyaránt figyelembe vehetők, és amelyben a bizonytalanságok explicit módon reprezentálhatók valószínűségi eloszlási függvények definiálásával, így mind az érzékenység-, mind a bizonytalanságelemzés elvégezhető a Monte Carlo szimulációs megközelítéssel. Ebben a cikkben arra összpontosítunk, hogy a bioszférát hogyan vettük figyelembe a TSPA modellünkben, de a jobb megértéshez az egész rendszerre vonatkozó releváns információkat közöljük. Kiértékelésünket 58 radioaktív izotóp átminősítésével végeztük, melyeket a potenciális radionuklidok szélesebb köréből szűrtünk ki. Az 5 évnél rövidebb felezési idejű izotópokat kezdetben kiszűrték, mivel a geoszféra várható terjedési ideje több ezer és tízezer évre tehető, így a rövid élettartamú radionuklidok csak azután juthatnak el a bioszférába, hogy addigra nagymértékű radioaktív bomláson estek át, ami azt eredményezte, hogy az aktivitásuk az eredeténél sok nagyságrenddel alacsonyabb lett. A bioszféra valószínűleg a leggyorsabban változó része a vizsgált rendszernek, és modellezése speciális megközelítéseket igényel a lehetséges radiológiai kockázatok levezetésére. A bioszférán belüli radiológiai következmények hosszú távú modellezésére három megközelítést alkalmaznak széles körben: 1) a radioaktivitási méréseket a természeti értékekkel és a hatályos törvényi határértékekkel hasonlítják össze, 2) a jelenlegi bioszféra-viszonyokat feltételezik, és 3) a stilizált bioszférát veszik figyelembe.

Jelenlegi modellünkben és a cikkben a teljes vizsgált időkeretben állandó, a jelenleginek megfeleltethető bioszféra-viszonyokat feltételeztünk. A tanulmány célja a bioszféra modell bemutatása és azon belüli hidrogeokémiai analógia észszerűségének indoklása a hiányzó paraméterek meghatározásában. Azon nuklidadatok esetében, amelyeknél kevés vagy nem álltak rendelkezésre irodalmi adatok, paraméterértékeket származtattunk abból a feltételezésből, hogy terjedési és bioakkumulációs folyamataik leírhatók más izotópokkal való kémiai hasonlóságukkal, amelyekről adatok álltak rendelkezésre. Eredményeink azt mutatják, hogy a geoszférán belüli hosszú migrációs útvonalak miatt csak a hosszú felezési idejű konzervatív izotópok és néhány uránizotóp és leányelemeik juthatnak el a bioszférába, és csak azok gyakorolhatnak jelentős radiológiai hatást az élővilágra. A bizonytalansági elemzések azt mutatják, hogy a számított effektív dózisok várhatóan egyetlen nagyságrendre korlátozódnak, ami viszonylag alacsony a figyelembe vett időkeretekhez képest.

A „BIOSZFÉRÁK” LEÍRÁSA

A vizsgált tároló egy repedezett gránit kőzetben található, több száz méterrel a felszín alatt. Azok a felszíni területek, ahol a bioszférák a modellben meghatározottak, a tárolótól bizonyos távolságra a potenciális geoszféra-terjedési útvonalak végén helyezkednek el, ahol elérik a mállott gránit zónát. Az összes víztermelés a mállott gránitra telepített kutakból történik, mivel az alatta lévő gránit nem tekinthető fenntartható víztermelési lehetőségnek.

A telephelyre vonatkozó TSPA modell három, egymástól eltérő komplexitású bioszférát tartalmaz (1. ábra). Feltételezzük, hogy a nagyobb komplexitású bioszférák magukban foglalják az összes besugárzási útvonalat, amelyek a kevésbé összetettek közé tartoznak, és kiegészítik azt továbbiakkal. Az erdők/erdős területek (BIO1), a patak völgyek (BIO2) és a sík völgytalpakon mezőgazdasági tevékenységet folytató települések (BIO3) bioszféráját vettük figyelembe. A legegyszerűbb bioszférában (BIO1) csak három besugárzási útvonalat veszünk figyelembe: vízfogyasztást, szőlő- és borfogyasztást. A BIO2 számos zöldséget és gyümölcsöt, valamint számos házasított állati hús előállítását és fogyasztási módot ad ehhez hozzá. A BIO3 ezt kiterjeszti a halfogyasztással a tároló közelében lévő halastóból. A szennyezett víz vagy közvetlenül a mállott gránitból (emberi és állati ivóvíz, halastó), vagy a talajon és növényeken keresztül történő öntözéseként jut be a besugárzási útvonalba. A növények részben a gyökereiken keresztül a gyökérzónából veszik fel az oldott formában elérhető radionuklidokat, majd akkumulálják a növényi részekben azokat. A növények közvetlenül lehetnek állati és emberi tápanyagok (takarmánynövények, gabonák, konyhakerti növények, gyümölcsök, gombák stb.), valamint a táplálékláncban a radionuklidok az állati termék fogyasztásán keresztül is bekerülhetnek az emberi szervezetbe. A szennyező anyagok talajban való eloszlását és felhalmozódását a növényekben és állatokban valószínűségi változókkal írhatók le (1, 2), míg az emberi dózis számításánál csak determinisztikus paraméterek javasoltak a szakirodalom alapján (3, 4).



1. ábra: A bioszféra modellben figyelembe vett besugárzási útvonalak (BIO1: zöld, BIO2: kék, BIO3: lila, a lila nyilak a szennyezett vizeket, míg a kék nyilak a tiszta vizeket jelölik)

MATEMATIKAI MODELL

A bioszféra matematikai modelljét először aritmetikai és differenciálegyenletek sorozataként fogalmaztuk meg, amelyek leírják a radionuklidok talajon belüli szállítását, valamint a növényekben és háziállatokon belüli felhalmozódásukat. Ezek az egyenletek a szabványos irodalmi képleteket követik a folyamatokra vonatkozóan, feltételezve, hogy a modellben figyelembe vett időtávon egyensúly uralkodik.

Általánosan igaz, hogy mind a determinisztikus modellek, mind a sztochasztikus becslések alkalmazása lehetőséget adnak a sugárterhelés helyszín- és idő-specifikus meghatározására. Determinisztikus paraméterek alkalmazására elsősorban ott van lehetőség, ahol azok pontos értéke ismert, vagy kis bizonytalansággal becsülhető. A sztochasztikus megközelítés esetén alkalmazott valószínűségi eloszlások lehetővé teszik a bizonytalanság számszerűsítését, és explicit módon történő kezelését.

A matematikai modellek osztályozásának másik módja a statikus és dinamikus modellezés. A legfontosabb különbség egy rendszer statikus és dinamikus modellje között, hogy a dinamikus modellben időben változó paraméterekkel a folyamatok időbeliségét is vizsgáljuk. Egy másik különbség abban rejlik, hogy a dinamikus modellben differenciálegyenleteket alkalmazunk, a statikus modellben algoritmusok megoldásait. A dinamikus modellek változása az idő függvényében változik, míg a statikus modellek egyenletes egyensúlyi állapotban vannak. A statikus modellezés merevebb, mint a dinamikus modellezés, mivel ez egy rendszer időben független nézete. Nem változtatható meg valós időben, ezért nevezik statikus modellezésnek. A dinamikus modellezés rugalmas, mivel az általa szolgáltatott eredmény idővel változhat, sőt változik is.

A Bátaapáti modell teljes matematikai megfogalmazása nem tárgya a cikknek, de a követhetőség kedvéért az alapegyenleteket bemutatjuk. Az izotópok (beleértve a leányelemek) mozgását a talajfelszín 1–10. rétegeiben matematikai és számítástechnikai eljárásokkal, a ModelMaker szoftverrel numerikusan oldottuk meg. Így lehetőség nyílt az eredmények egyszerűsített beépítésére a TSPA rendszerbe. Az állóvizek hosszú távú modellezése nem igényel ilyen részletezést.

A bioszféra és a geoszféra határfelülete a mállott gránit, ezért a geoszféra kimenti koncentrációja lesz a bioszféra bemeneti koncentrációja. A talajvízből (mállott gránitból) eredő kontamináció a jelen mezőgazdasági gyakorlatban kizárólag a konyhakerti művelésben értelmezhető, bár a klímaváltozással az egyéb mezőgazdasági területek locsolása sem zárható ki. A növények különböző mélységből veszik fel a tápanyagokat így a radionuklidokat is. A növények fajtánként és típusonként más-más felszívódási (gyökér) zónával jellemezhetők.

Állóvizekben, mint pl. a Bátaapátiban lévő halastavak víztérfogata (V) meglehetősen kicsi ahhoz, hogy bennük a víz átlagos tartózkodási ideje sokkal kisebb, mint az előforduló radionuklidok élettartama. Ezért a halastó vízének radionuklid koncentrációja közel megegyezik a tápláló forrás, ill. patak radionuklid koncentrációjával, azaz

$$C_w = C_{w,inf} ,$$

ahol C_w : a halastó vízének radionuklid koncentrációja ($Bq \cdot m^{-3}$),

$C_{w,inf}$: a tápláló forrás vízének radionuklid koncentrációja.

A szedimentum és a hal kontaminációja a K_{dsed} ($m^3 \cdot kg^{-1}$) megoszlási és a B_{hal} ($m^3 \cdot kg^{-1}$) bioakkumulációs faktorokkal számolható, azaz

$$C_{sed} = K_{dsed} \times C_w .$$

$$C_{hal} = B_{hal} \times C_w .$$

Amennyiben a tó lefolyása olyan kicsi, hogy a benne lévő víz tartózkodási ideje mégis összevethető a radionuklidok élettartamával, akkor az átlagos tartózkodási idő (τ) a kiáramlás időállandójának (λ_{out}) reciprokával közelíthető és ez alatt az idő alatt a halastó vízének, és így a kifolyó víznek, a kontaminációja a fizikai bomlás (λ_r) révén lecsökken a következő értékre:

$$C_{w,out} = C_{w,inf} \times e^{-\lambda_r/\lambda_{out}},$$

ahol a $\lambda_{out} = I_{infl}/V$, feltételezve, hogy a kiáramlás ugyanakkora, mint a beáramlás, azaz egyensúly áll fenn.

Az állóvizek aljára leülepedett iszap ugyanolyan összetételűnek tekinthető, mint a vízben lebegő iszap, szedimentum. Mivel a tavak mélysége legfeljebb 2–3 m, a kiülepedés időtartama elhanyagolható más vízi jelenségek, akár a tápláló víz és állóvíz keveredési időtartamához képest.

Összetettebb, több kompartmentes rendszerek (időben változó forrás, többféle iszap, vízi növény és hal) modellezése során a felírt differenciálegyenletek megoldása már csak az esetek egy részében adható meg algebrai kifejezésekkel. Ilyen esetekben a differenciálegyenleteket numerikusan megoldó matematikai és számítástechnikai eljárások szükségesek, pl. a ModelMaker-jelű szoftver. Állóvizek hosszú távú modellezésénél nincs szükség ilyen fajta részletességre. A bátaapáti hulladéktároló esetében egy kisméretű halastóval számolunk, ami feltételezhetően kis dóziszárulékot ad a bioszférához.

A talaj összetételétől függően egy nuklidra is többféle affinitású kötőhely létezhet. A talaj kolloidjai bizonyos kationokat képesek specifikus módon megkötni. A specifikusan kötött ionok nem, vagy csak igen nehezen cserélhetők. [Pl. a rétegszilikátok azon kationok megkötését preferálják, melyek ionméretük révén legjobban illeszkednek a rácsfelszínbe, illetve a rácshidok között kialakult vízhálózatba (K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , U^{4+}). A humuszanyagok kelátképzése szintén specifikus kationadszorpciónak tekinthető.] Ugyanakkor a talajkolloidok többségében a felületeket negatív töltések uralják, de kis mennyiségben pozitív felszíni töltések is megjelennek., melyek legnagyobbbrészt a változó polaritású helyeken jönnek létre, így a talajsavanyúsággal (pH változás) együtt az anioncserélő kapacitás is nő. Amennyiben a talajoldat összes ionkoncentrációja alacsony, úgy a negatív felszíni töltésekre vonatkoztatott diffúz réteg olyan méretű, hogy az a pozitív felszíni töltéseket is lefedi. A kötőhelyek közötti mozgás, a szorpciós és deszorpciós folyamatok időskálája néhány órától több évig tarthat. Míg a szabad, az ionos forma a talajvízben oldva a vízzel (esővel, öntözővízzel) együtt mozog, infiltrálódik a mélyebb rétegekbe, a kötött formák mélységi mozgása elhanyagolható, ill. csak beavatkozással, talajműveléssel, pl. szántással kerülnek mélyebbre. Több rétegű talajt feltételezve az egyes rétegek közötti mozgás, az aktivitásváltozások, pontosabban az $F=1$ m² talajfelületre vonatkozó kompartmentekben a következő differenciálegyenletekkel írhatók le.

Az 1. (legfelsőbb) rétegben az aktivitás változása:

$$\frac{dA_1}{dt} = C_{irr} \times I_{irr} - \left[\frac{\lambda_{s,1}}{(1-roff)} + \lambda_r \right] \times A_1,$$

ahol A_1 (Bq) az aktivitás, C_{irr} az öntözővíz aktivitáskoncentrációja (Bq·m⁻³), I_{irr} az öntözés intenzitása az $F=1$ m² felületű talajra (m³·nap⁻¹), $\lambda_{s,1}$ az infiltráció időállandója a felső talajrétegben (értéke a talaj sűrűségétől, porozitásától stb. függően változhat a mélységgel), λ_r a radioaktív bomlási állandó és „roff” a felszíni elfolyás részaránya, $roff \leq 1$.

Ezen differenciálegyenlet analitikus megoldása, A 10 kezdeti érték mellett a következő lesz:

$$A_1(t) = A_{1,t=0} \times e^{-\Lambda_1 \times t} + C_{irr} \times \frac{I_{irr}}{\Lambda_1} \times [1 - e^{-\Lambda_1 \times t}],$$

ahol $\Lambda_1 = \left[\frac{\lambda_{s,1}}{(1-roff)} + \lambda_r \right]$.

A mélyebb rétegekben, általánosan az i -ben pedig a következő lesz az aktivitás változása:

$$\frac{dA_i}{dt} = \lambda_{s,i-1} \times A_{i-1} - (\lambda_{s,i} + \lambda_r) \times A_i.$$

A talajjellemzők alapján λ_{si} értéke a következő:

$$\lambda_{si} = \frac{(I_r + I_{irr}) \cdot (1 - roff)}{d_i \left[1 + K d_i \cdot \rho_i \left(\frac{1 - \varepsilon_i}{\varepsilon_i} \right) \right]},$$

ahol d_i (m) a rétegvastagság, I_r ($\text{m} \cdot \text{nap}^{-1}$) az eső intenzitása, ρ_i a talaj sűrűsége ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$), ε_i a nedvességtartalom, $K d_i$ pedig az elemfüggő megoszlási hányados ($\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1}$).

Az állandó együtthatós differenciálegyenletek megoldásai analitikus alakban is felírhatók, mégpedig a 2. és 3. talajrétegben a $F=1 \text{ m}^2$ felülethez tartozó kompartmentek aktivitása a következő lesz:

$$\begin{aligned} A_2(t) &= a_1 + a_2 \times e^{-\lambda_1 \times t} + a_3 \times e^{-\lambda_2 \times t} \\ A_3(t) &= b_1 \times [1 - e^{-\Lambda_3 \times t}] + b_2 \times [e^{-\Lambda_1 \times t} - e^{-\Lambda_3 \times t}] + b_3 \times [e^{-\Lambda_2 \times t} - e^{-\Lambda_3 \times t}] + \\ &\quad A_{3,t=0} \times e^{-\Lambda_3 \times t}, \end{aligned}$$

ahol:

$$\begin{aligned} \Lambda_i &= \lambda_{s,i} + \lambda_r, i = 2, 3, \dots \\ a_1 &= I_{irr} \times \frac{C_{irr}}{\Lambda_1}, a_2 = \frac{(A_{1,t=0} - I_{irr} \times \frac{C_{irr}}{\Lambda_1})}{(\Lambda_2 - \Lambda_1)}, a_3 = (A_{2,t=0} - a_1 - a_2) \\ b_1 &= \lambda_{s,2} \times \frac{a_1}{\Lambda_3}, b_2 = \lambda_{s,2} \times \frac{a_2}{(\Lambda_3 - \Lambda_1)}, b_3 = \lambda_{s,2} \times \frac{a_3}{(\Lambda_3 - \Lambda_2)}. \end{aligned}$$

Az egyes talajrétegekben kialakuló aktivitáskoncentrációk az $A_i(t)$ aktivitásokból az $F=1 \text{ m}^2$ felszínhez tartozó tömeggel való osztással számolhatók, ismerve a réteg vastagságát és a talaj sűrűségét. Amennyiben a radioaktív bomlás során leányelemekkel is számolni kell, akkor minden egyes talajrétegben nemcsak a felette lévő rétegből "érkezik" leányelem, hanem a saját rétegből is, az anyaelem bomlása révén. Ezen általános esetben az anyaelem és leányelem változását leíró differenciálegyenlet, az i -edik. mélységi rétegben, kompartmentben a leányelem aktivitás ($A_{i,d}$) változása:

$$\frac{dA_{i,d}}{dt} = \lambda_{s,i-1,d} \times A_{i-1,d} - \lambda_{s,i,d} \times A_{i,d} + \kappa_d \times \lambda_r \times A_i - \lambda_{r,d} \times A_{i,d},$$

ahol elágazó bomlási lehetőség esetén κ_d a leányelembomlás hányada, valamint a d alsó index minden esetben a leányelemre utal.

Rendszerint 3 mélységi talajréteg elegendő a talaj γ -sugárzó radionuklidjaiból származó külső dózis, a reszuszenzió, és a gyökéren történő növényi felvétel becslésére. A talajtól eredő külső dózist elsősorban a felső vékony (kb. 1 cm) réteg határozza meg, a mélyebb rétegeknél mindenképpen figyelembe kell venni a gamma-sugárzás elnyelődését. A gyökéren keresztüli felvételt pedig erősen befolyásolja a gyökérréteg mélysége, mely 1–5 cm-től egészen 1–2 m-ig változhat.

Mivel az öntözést rendszerint a haszonnövény fejlődése határozza meg, azaz szakaszos, ezért a differenciálegyenletek megoldása is szakaszosan történik. Különösen a hosszú idejű (több éves) vizsgálatokhoz egy-egy emberi beavatkozás (talajfunkció változás, öntözés kezdete és vége, talajművelés) szintén szakaszos megoldásokat igényel, Ezért minden egyes beavatkozás után a talajrétegek kezdeti aktivitását figyelembe kell venni.

Az infiltráció, a konvekció mellett mind a lefelé, mind a felfelé irányuló diffúzió is szerepet játszhat, igaz ennek hatása rendszerint elhanyagolható a konvekció mellett. A diffúziót és az elfolyást egyaránt leíró parciális differenciál-egyenlet a következő formában írható fel:

$$\frac{\partial c_j}{\partial t} = -D_j \times \frac{\partial^2 c_j}{\partial z^2} - \lambda_{j,z} \times c_j - \lambda_r \times c_j,$$

ahol $c_{j,t}$ a j-ik species koncentrációja az idő (t) és talaj mélység (z) függvényében (Bq/kg), D_j a j-ik speciesre vonatkozó diffúziós állandó a talajban (m^2/nap), (pl. radiocézium esetén a labilis és a fix kötőhely diffúziója és konvekciója zérusnak vehető), λ_{ji} az i→j irányú átalakulás, kötési reakció, valamint a mélységi konvekció sebességére jellemző állandó (elsőrendű folyamat esetén egysége 1/nap).

Amennyiben a talajrétegekben csak a radioaktivitást tekintjük, a kötött speciessel nem törődünk, akkor azt látjuk, hogy a nuklid sokkal lassabban mozog a talajban, mint a vízben oldható forma során.

A talajmodellezés tehát bebizonyította, hogy nincs értelme 3-nál több réteget figyelembe venni egy hosszú távú modellben, csak jól kell megválasztani a talajrétegek vastagságát. A növényi szennyeződés matematikai megfogalmazásában a legjelentősebb tényezők a gyökérekén keresztül történő felszívódás [talaj-növény transzfer faktor (TF), amely szigorúan az egyensúlyi feltételekre vonatkozik (15)], valamint a transzlokáció és fennakadás (5, 6, 7). Ezen kívül lemosódhat a felületről a talajra esővel vagy öntözővízzel. Kvantitatív radionuklidvesztés a betakarítással nem feltételezhető. A radionuklidok állatok általi felvétele az állat fajától, súlyától, valamint táplálkozási és emésztési jellemzőitől függ (5). A legeltetett állatok esetében jelentős lehet a talajjal a szervezetbe kerülő aktivitás.

Növényi vegetáció: A talajból történő felszívódással, valamint az öntözővízzel a talajjal együtt a növényzet is szennyeződik. A növény felületére kerülő radionuklid az anyagcsere-folyamatok révén bejut a növény belsejébe (transzlokáció), többek közt annak felhasználható, ehető részébe (5, 8, 10), az akkumulációt a szezonális erősen befolyásolhatja. Emellett a szennyeződés felületről leperreghet, valamint az öntözővízzel és esővel lemosódhat a talajra. A növényzet, ill. az abból származó termés begyűjtésével csökkenő radioaktív anyag normális gazdálkodás mellett elhanyagolható. A növényi szennyezettség másik forrása a talajból eredő felszívódás a gyökéren keresztül. Az utóbbit jellemzi a talaj-növény transzfer faktor (TF), mely szigorúan egyensúlyi viszonyokra vonatkozik (6, 9). Számos nemzetközi és hazai vizsgálat létezik gyümölcsre vonatkozó transzfer faktorok meghatározására (8).

A fenti két folyamat révén az i-ik növényi termés aktivitáskoncentrációját C_{vi} ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) a következő összefüggés írja le:

$$C_{vi} = C_{si} \cdot TF_{vi} + \frac{T_w}{\ln 2} \cdot \frac{TL_{vi} \cdot If_{vi}}{Y_{vi}} \cdot (I_{irr} \cdot C_{irr}),$$

ahol C_{si} a talaj gyökérréteg aktivitáskoncentrációja ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$), TF_{vi} (-) a talaj-növény transzfer faktor, T_w a lepergés, lemosódás un. időjárási felezési ideje (nap), TL_{vi} (-) a transzlokációs faktor, If_{vi} (-) a fennakadási tényező (interception), azaz a teljes öntözés azon része, mely

fennakad a növény felületén (7) és Y_{vi} ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$) az adott növényfajta területegységre vonatkoztatott hozama. A különböző vegetációk között a gabonanövények, takarmányfűvek és erdei termékek esetén az öntözési tag nulla.

A bioszféra modell jellemzően tartalmaz erdei ökoszisztémát is. Bátaapáti bioszféra modellben is (190 m tengerszint magasságban) a mállott gránit a felszínen vagy annak közvetlen közelében helyezkedik el. Ilyen területen az erdei termények, elsősorban gombák, bogyós erdei gyümölcsök (15) szőlőművelés és borászat képzelhető el, a növényi vegetáció szempontjából.

Haszonállatok termékei: az állatok radionuklid felvétele függ az állat fajtájától, tömegétől, korától valamint táplálkozási és emésztési jellemzőitől (5). Legeltetett állatok esetén jelentős lehet a talajjal a szervezetbe kerülő aktivitás. Állandó radionuklid felvétel mellett a haszonállatok termékeinek aktivitáskoncentrációja a következőképpen írható le:

$$C_{pi} = F_i \cdot \left(\sum_i C_{vi} \cdot Q_i + C_{wd} \cdot Q_{wi} \right) \cdot \exp(-\lambda_r \cdot \tau)$$

ahol C_{pi} ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) az adott állati termék aktivitáskoncentrációja, C_{vi} ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) a takarmány aktivitáskoncentrációja, F_i ($\text{év} \cdot \text{kg}^{-1}$) a takarmány és a termék közötti átviteli, ún. transzfer koefficiens, τ (év) a termék felhasználásáig eltelt, vagyis tárolási idő.

A fenti megközelítés a hosszú biológiai felezési idejű radionuklidokra (U, Pu, Np, Am) valószínűleg konzervatív felülbecslést eredményez. Számos tanulmány (10, 11, 1, 2) vizsgálja a takarmány-tej, takarmány-hús transzfer faktorok hatását az állati és emberi belső sugárterhelés prognosztizálása szempontjából. Ezek alapján a fenti elemek transzfer tényezői nagyon kicsik, ezért az elfogyasztott állati élelmiszer emberre gyakorolt hatása kismértékű.

A HIDROGEOKÉMIAI PERIÓDUSOS RENDSZER ALKALMAZÁSA

Nemzetközi útmutatást és gyakorlatot követve a modellben figyelembe vett izotópok körét felezési idejük és radiotoxicitásuk alapján szűrtük. A rövid élettartamú ($t_{1/2} < 5$ év) és az alacsony toxicitású ($X < 0,1$ Sv) izotópokat nem vettük figyelembe (12, 13), mivel a geoszféraiban történő vándorlási idejük több ezer-tízezer év nagyságrendű volt, amely alatt a radioaktív bomlás hatására a környezeti aktivitásuk az eredeti aktivitásuk egymilliomodára vagy kevesebbre csökken. A modell paraméterei két nagy részre oszthatók, a nuklidfüggetlen (vagy elemfüggetlen) és nuklidfüggő paraméterekre. Mivel a sztochasztikus modellszámításokra, azaz a paraméter-bizonytalanságok becslésére fel kell készülni, a paraméterértékek nem csak pontbecslési értéként, hanem valószínűségi eloszlásfüggvények jellemző statisztikai paramétereiként is definiáltak. Magyarországról korlátozottan állnak rendelkezésre helyspecifikus bioszféra adatok, ezért nemzetközi adatbázisokat használtunk. Számos uniós projekt biztosít adatbázist. E jelentések összeállításában általában magyar szakértők is részt vettek (1, 2, 5), azaz bizonyos mértékig tükrözik a hazai viszonyokat is. Leginkább új helyspecifikus mérésekkel és faktorok meghatározásával korábban nem mért élelmiszercsoportokra/mezőgazdasági termékekre (pl. európai és ázsiai élelmiszerek). A talaj szerepe azért kiemelten fontos, mert a növény felhalmozza a nuklidok vízzoldható, szabad, ionos formáját, és ha a talajban magas a kötött/oldott arány (a K_d érték), akkor alacsonyabb bioakkumulációs tényező várható. Egyensúlyi és közel egyensúlyi feltételek szükségesek a K_d és a bioakkumulációs tényezők levezetéséhez (14). Teljesülését befolyásolja a radionuklidok

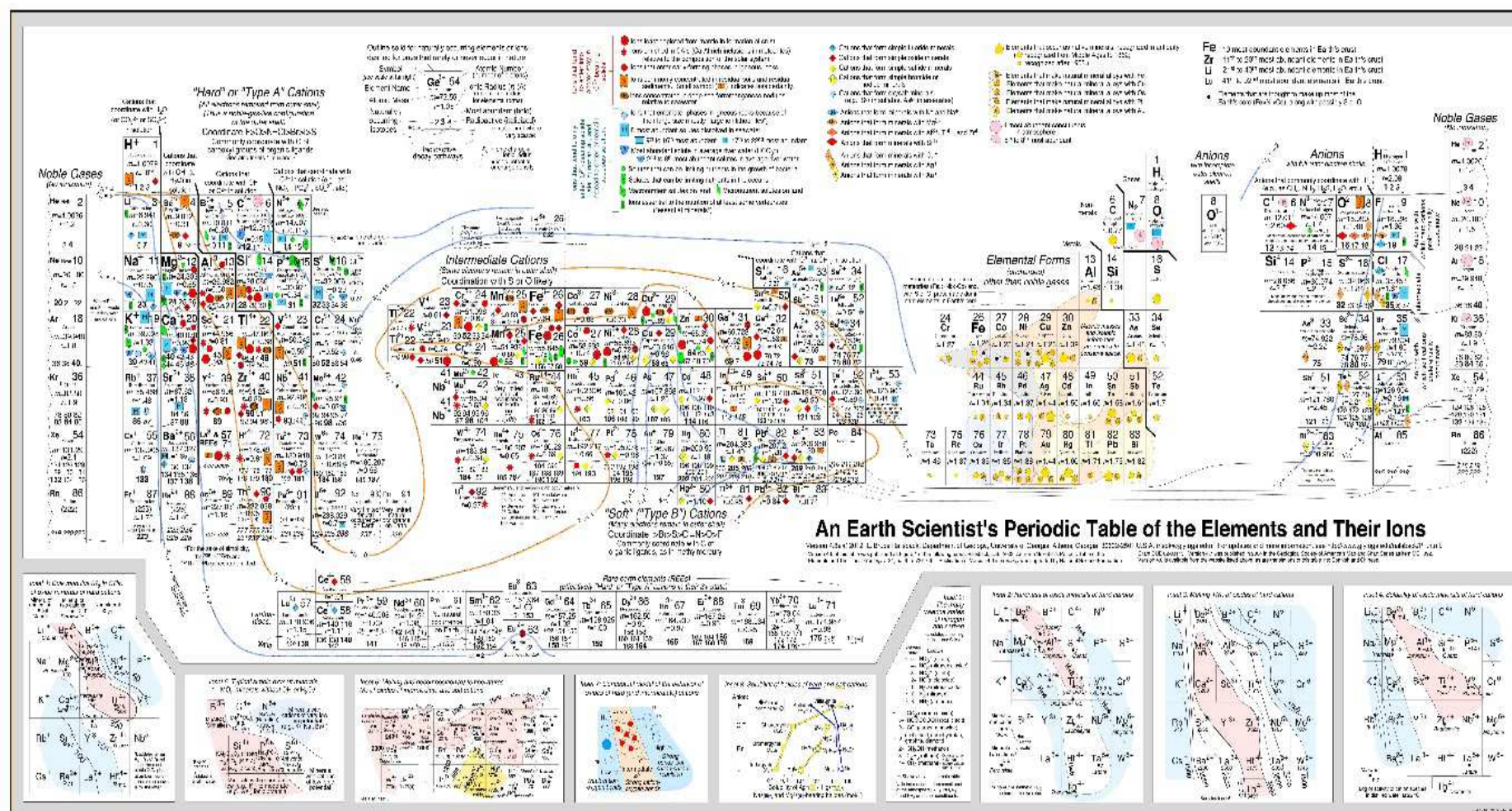
talajkomponensekhez való kötődési erőssége, a kicserélődés egyensúlyi ideje és egyéb reakciók.

A hulladékeltárban szereplő számos izotóp esetében a nemzetközi adatbázisok nem tartalmazzak minden adatot. Mengyelejev periódusos rendszerében az elemek sorszámuk szerint vannak elrendezve, ez az elrendezés jól szemlélteti az elemek periodikusan változó tulajdonságait, hiszen a kémiaiailag hasonlóan viselkedő elemek azonos oszlopba kerülnek. Az izotópokat a periódusos rendszer nem választja el egymástól. A természetben, így a geoszférában és a bioszférában az izotópok nem elemi állapotban, hanem ionos formában, vagy komplexekhez kötötten jelennek meg. Véleményünk szerint a Mengyelejev-féle periódusos rendszer nem használható megokolható módszerként a nem vagy kevésbé ismert izotópokra vonatkozó adatok becslésére. Ezért egy másik, teljesen új megközelítést választottunk, nevezetesen a „hidrogeokémiai periódusos rendszer” analógiáját (16, 17). A rendszer kialakításának fő motívuma az volt, hogy a természetben nem semleges elemek, hanem – az adott geokémiai környezetnek megfelelő – különböző oxidációs fokú ionok, komplexek jelennek meg. Azok viselkedését pedig elsősorban az ionpotenciáljuk (az oxidációs fokuk és ionrádiuszuk hányadosa) határozza meg. Amikor a szennyezőanyagok – jelen esetben a radionuklidok – természetes környezetben végbemenő terjedési folyamatait, pl. oldhatóságát vagy szorpcióját, kell jellemezni, akkor ez a megközelítés alkalmasabb, mint a semleges kémiai elemek alapján történő hasonlóságok figyelembevétele.

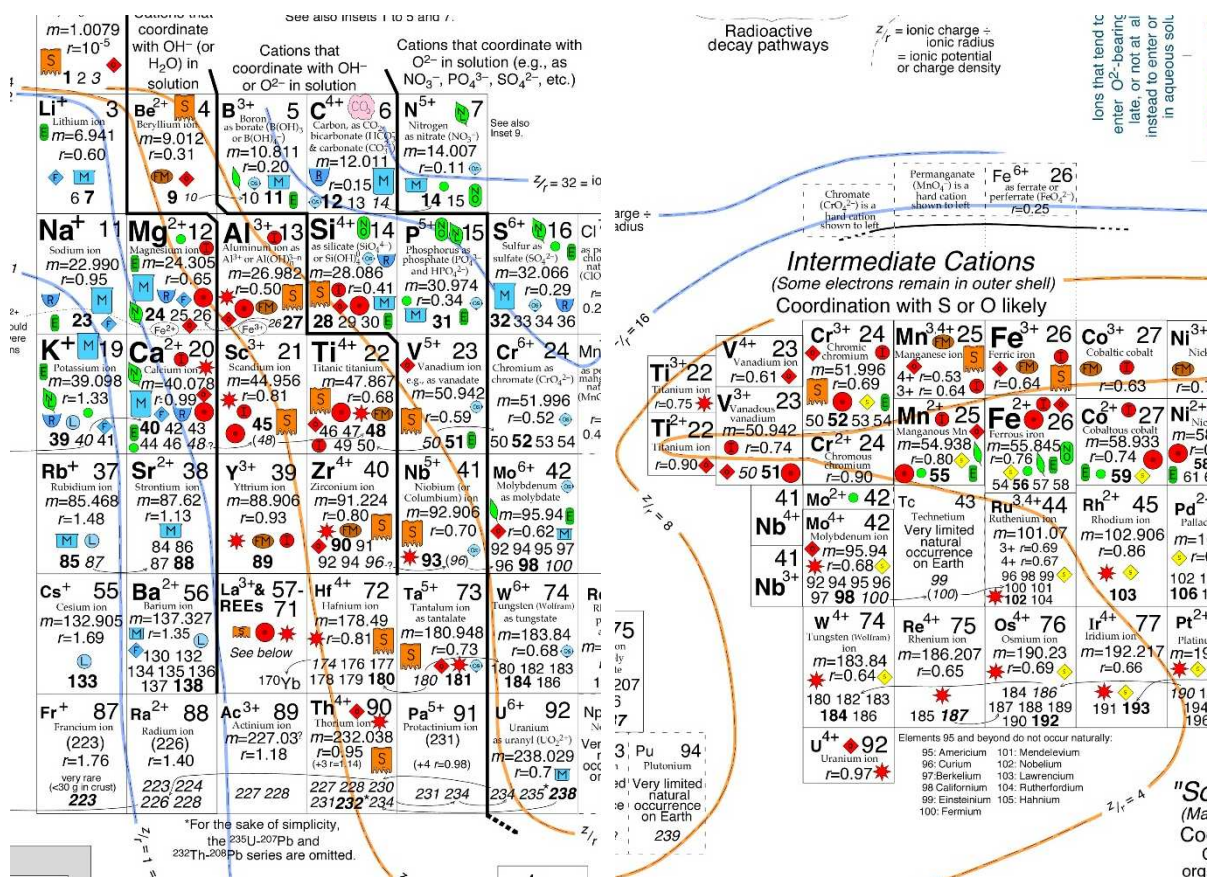
E megközelítés alapján először meg kell határozni a tipikus geokémiai környezet ionos formáját. Alapvetően az izotópok lehetnek kationos vagy anionos formában. Az analógia alapja tehát nem az elemek periodikusan változó tulajdonságai, hanem a többi ionhoz hasonló viselkedés. A tárolón belül minden bizonnyal erősen redukzív, magas pH-jú (erősen lúgos) környezet lesz, de az onnan származó szennyezett víz valószínűleg gyengén redukzív és lúgos (mindkét szempontból szinte semleges) környezetben migrál át a geoszférán. A felszín közelében (mállott gránitban és talajban) minden bizonnyal oxidatív és semleges (és talán gyengén savas) környezet várható. Tehát a hiányzó paraméterértékeket az ilyen környezetben lévő ionokra vonatkozó meglévő adatok alapján származtattuk. Az adathiányos radionuklidok viselkedésének leírásához, a várható viselkedésüket jellemző paraméter értékek származtattuk a bemutatott megközelítést. Így pl. olyan, a kémiai elemek periódusos rendszerében egymástól aránylag távol lévő elemek radionuklidjaira tudtunk paramétereket meghatározni, mint pl. a Ti^{4+} – Zr^{4+} – Th^{4+} – Pa^{5+} – U^{4+} – Nb^{3+} – Nb^{4+} – Mo^{4+} és Tc, amelyek mindegyike a átmeneti kationok közé tartozik, ionpotenciáljuk pedig 4 és 8 között változik.

A módszer alkalmas egyes tényezők paraméterezésére, mint például Kd, bioakkumuláció stb., de nem alkalmas dóziskonverziós faktorok (DCF, DF) kiszámítására. A lenyelési és belélegzési dózis átváltási tényezőit az ICRP 119 (4). számú szabvány szerint kell meghatározni, amelyben minden izotópra rendelkezésre állnak adatok. A külső dózis meghatározása az ICRP No. 116 szerint történik (3).

A 2–3. ábra a hidrogeokémiai periódusos rendszert (HPT) mutatják be. A HPT komplex ábrája kizárólag azért kerül közlésre, hogy áttekintést adjon a tábla jellegéről. Az alábbi hivatkozásokon keresztül elérhető és részleteiben megtekinthető (16, 17).



2. ábra: A hidrogeokémiai periódusos rendszer

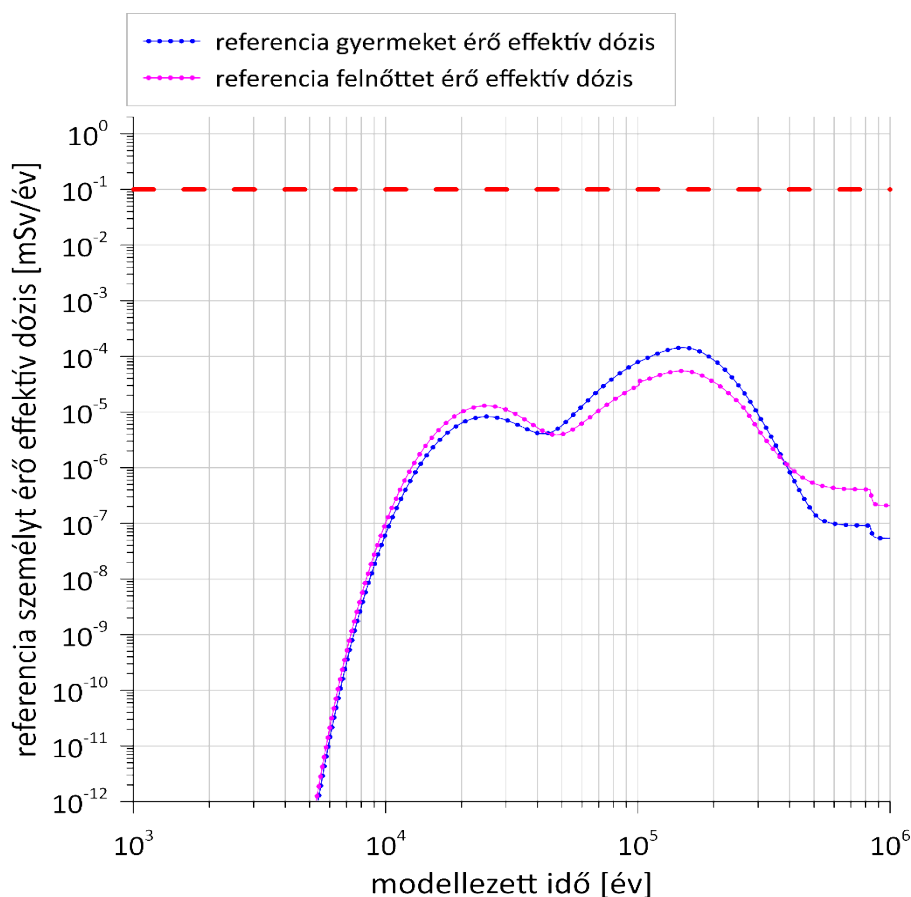


3. ábra: A hidrogeokémiai periódusos rendszer két kivágata (bal oldalon a kemény, jobb oldalon az átmeneti kationok) (16, 17)

EREDMÉNYEK

A korábbi biztonsági értékelések tapasztalatai alapján feltételezhető, hogy a bioszférába kizárólag a hosszú felezési idejű izotópok képesek kimutatható mennyiségben felszínre jutni. Azok közül is elsősorban a konzervatív viselkedésűek (szerves ^{14}C , ^{36}Cl és ^{129}I). Kisebb mennyiségben – és időben ezekhez képest késleltetve – megjelenhetnek szorpcióra hajlamos izotópok is, pl. a ^{59}Ni , a ^{135}Cs , valamint az urán bomlási sorok tagjai (amelyek közül pl. a radon potenciálisan jelentős dózist eredményezhetne, de csak zárt terek, vagy a felszínen való hosszú idejű tartózkodás esetén). Ezek megjelenése azonban csak több százezer évet követően (vagy még később), vagyis a vizsgálati időtartomány vége felé, vagy azt követően következhet be. Ezért az elmúlt évtizedekben bekövetkezett atomerőművi balesetek (a csernobili és a fukusimai) kapcsán elvégzett vizsgálatok eredményei csak nagyon korlátozottan használhatók fel a hosszú távú biztonság megítéléséhez kapcsolódó sugárterhelés-számítások során.

A bioszféra bemenetét a geoszféra-bioszféra határfelületen megjelenő, vízben oldott aktivitáskoncentráció jelenti. Két alapvető forgatókönyvet vettünk figyelembe, az egyiket, amikor a megközelítő vágatokban épített „torlasztói záródugó” megfelelően működik, a másikat pedig, amikor nem. A referencia személy effektív dózisének időbeli lefutása (4. ábra) jellemzően két lokális maximumot mutat felnőtt és gyermek esetében egyaránt. Az első csúcspont körülbelül 25000 év után következik be, 3×10^{-5} mSv/év effektív dózissal felnőtteknél (ezen a csúcson a gyermekek effektív dózisa valamivel alacsonyabb, 1×10^{-5} mSv/év körüli).

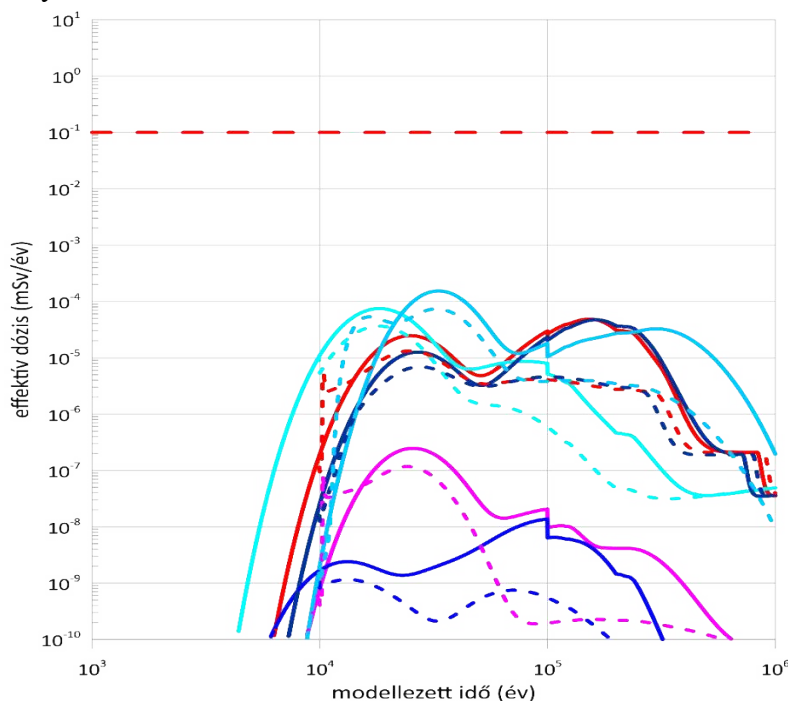


4. ábra: A felnőtt (kék) és a gyermek (lila) korcsoportra számított effektív dózis időbeli alakulása a normál forgatókönyv, 100 000 évnél tönkremenő torlasztói záródugó esetén

A hidrogeokémiai periódusos rendszer azt mutatja, hogy néhány ion hidrokémiai szempontból átfedésben van a Mengyelejev-féle periódusos rendszerrel, például a Ca és Sr (az alkáliföldfémek) esetében. Kémiai hasonlóságuk mellett hasonló ionformájúak (Ca^{2+} és Sr^{2+}), és ezért hasonló a geológiai viselkedésük is. A geológiai klaszterezés például az aktíniumot (Ac^{3+}) és az európiumot (Eu^{2+}) egy klaszterbe helyezi, bár a hagyományos periódusos rendszerben más-más csoportba tartoznak. Környezeti viselkedésük azonban arra utal, hogy mind kemény kationok. Ez a hasonlóság hasznos mind az aktínium, mind az európium esetében, amelyekre vonatkozó adatok gyakran nem állnak rendelkezésre nemzetközi publikációkban vagy adatbázisokban. A következő analógiákat is alkalmaztuk: kemény kationok, tórium (Th^{4+})-magnézium (Mg^{2+}), vagy urán (U^{6+}) – nióbium (Nb^{5+}) – titán (Ti^{4+}). Közbenső kationok: az átmenetifémek csoportja, kivéve néhány átmeneti fémet (Sc, Ti, Zr, Nb stb.), amelyek kemény kationok. A geológiai viselkedés szerinti klaszterezés néhány kivételtől eltekintve lefedi a hagyományos táblázat legtöbb csoportját. Ide tartozik a mangán-vas vagy ólom-réz analógia. Az átmenetiekationok nem tartalmaznak nagy tömegszámú izotópokat, ellentétben a kemény kationokkal. A geológiai periódusos rendszeren alapuló természetes körülményekre vonatkozik, így nem tesz összehasonlítást a transzurán elemekre. A teljes modellezés eredményei: megfelelően működő torlasztói záródugók esetén elsősorban a normál geoszféra útvonalon a bioszférába kerülő szerves radiokarbonhoz köthető az első dózismaximum. A második csúcs 150 000 év körül figyelhető meg, itt a gyermekek effektív dózisa körülbelül egy nagyságrenddel magasabb, 1×10^{-4} mSv/év, míg a felnőttek dózisa csak valamivel magasabb

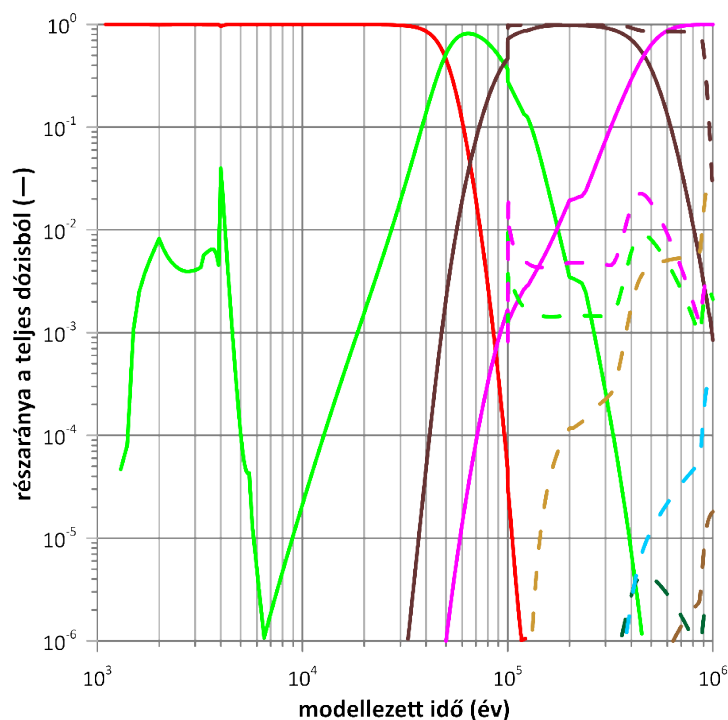
(körülbelül 5×10^{-5} mSv/év), mint az első csúcs esetén. Így a két korcsoportra számított effektív dózis aránya megfordul. Ennek az anomáliának az az oka, hogy míg az első csúcsnál a teljes effektív dózist a ^{14}C hozzájárulása uralja, addig ez a radionuklid a második csúcs idejére lebomlik, amelyet ezután a ^{79}Se és a ^{36}Cl dominál. A felnőttek és gyermekek esetében figyelembe vett sugárzási útvonalak eltérőek, és a különböző izotópokra alkalmazott dóziskonverziós tényezők a második csúcs során fellépő magasabb összeffektív dózist, valamint a korcsoportokra vonatkozó sorrendjük megfordulását eredményezik.

Az 5. ábra mutatja az egyes tárolókamrák hozzájárulását a teljes effektív dózishoz, jól látható, hogy a torlasztói záródugók korai degradációja esetén a legtöbb, de nem minden kamra esetén jellemző a két lokális maximum. Hangsúlyozni kell, hogy a torlasztói záródugók degradációja a normál forgatókönyvben is számításba lett véve, de ez 100 000 évvel a lezárást követően történik, míg a korai degradációs forgatókönyvben sokkal korábban (10 000 évnél). Az egyes kamrák viselkedése több tényezőtől függ: 1) a bennük elhelyezkedő radionuklidok kezdeti mennyiségétől (főleg a hosszú élettartamú, konzervatív izotópok aktivitáskonzentrációjától); 2) a kamrák műszaki gátrendszerének (Engineered Barrier System, EBS) kialakításától (például beton vagy acél konténereket használnak); 3) a tárolókamra elhelyezkedésétől az áramlási rendszerben, vagyis attól, hogy a kibocsátott radionuklidoknak milyen útvonalakon kell eljutniuk a bioszférába. A torlasztói záródugók korai degradációjának forgatókönyvét meghatároztuk és figyelembe vettük a biztonsági értékelésben, mivel ez potenciálisan magasabb maximális dózist jelent, de az eredmények azt mutatják, hogy a tárolókamrák egyikére sem lehetett nagyobb effektív dózist kiszámítani, mint a normál forgatókönyv esetében. De mégis érdemes megfontolni ezt az alternatív forgatókönyvet, mivel rövidebb terjedési útvonalat jelent (mind hosszban, mind időben), és azt a lehetőséget, hogy a radionuklidok elérhetik a mezőgazdaságilag fejlettebb, összetettebb területeket, ahol a szennyezett talajvíz felhasználása magasabb mértékű és diverzifikáltabb lehet, ami magasabb összdózist eredményezhet.



5. ábra: Az I-es kamramező kamráinak (4 kamra) hozzájárulása a teljes effektív dózishoz 100 000 év (folyamatos) és 10 000 (szaggatott) tönkremenetelű torlasztói záródugók esetén (keleti kamrák: kék árnyalatai, nyugati kamrák: piros és lila árnyalatai)

Mindkét forgatókönyvben csak a hosszú felezési idejű konzervatív izotópok (^{14}C , ^{36}Cl , ^{79}Se és ^{129}I) játszanak szerepet az effektív dózis meghatározásában (6. ábra). Ezen izotópok esetében még az itt figyelembe vett időhorizontok (10 000 év kontra 100 000 év) sem jelentősek (kivéve a radiokarbont).



6. ábra: A teljes effektív dózisban meghatározó szerepű radioaktív izotópok (^{14}C : piros, ^{36}Cl : világoszöld, ^{79}Se : sötétbarna, ^{129}I : lila, ^{135}Cs : barna, ^{93}Zr : okker ^{59}Ni : sötétzöld, ^{237}Np : kék) időbeli részarányának alakulása normál (folyamatos) és korai (szaggatott) torlasztói záródugó tönkremenetel esetén

A vizsgált 1 millió éves időszakon belül az éghajlatváltozás biztosan bekövetkezik, de annak természete, mértéke és időzítése csak nagy bizonytalansággal jelezhető előre. Ezért célszerű a speciális eseteket extrém helyzetként vizsgálni. Ilyen lehetséges eset az állandóan száraz vagy folyamatosan nedves éghajlat. A terület vízföldtani felépítése olyan, hogy a tároló szintjén uralkodó áramlási rendszer csak nagyon kevésbé érzékeny az ilyen felszíni folyamatokra és viszonyokra. Az is kimutatható, hogy a két lehetséges éghajlati viszonyok közül az állandó szárazság potenciálisan magasabb effektív dózisokhoz vezethet, mivel a mállott gránit zónájában kisebb lesz a tárolóból származó szennyeződések felhígulása. Érdeemes megjegyezni, hogy a modell nem vette figyelembe a bioszférán belüli folyamatokban (és az emberi viselkedésben) a klímaváltozás hatására bekövetkező változásokat.

KÖVETKEZTETÉSEK

A terjedési modellek az elméleti összefüggések alapján becsült értékeket hasonlítják össze a környezetben mért aktivitási értékekkel. Alapvetően ezekből az összehasonlításokból mérhető le a modell alkalmazhatósága és megbízhatósága. A hosszú távú modellezésben azonban nincs releváns gyakorlati összehasonlítási lehetőség, ezért a modell megfelelősége az eredményekben a megfelelő matematikai megközelítéstől, a megfelelő paraméterezéstől, és a bizonytalanságok megfelelő figyelembevételétől függ. A modellezési algoritmusnak rugalmasnak és egyszerűnek kell lennie, ráadásul az egyes számítási periódusok nem lehetnek végtelenül hosszúak.

A hosszú távú modellezés során a jelentős mérési hibák és bizonytalanságok miatt a modellnek nem csak a szennyeződés értékét, hanem annak bizonytalanságát is célszerű megbecsülnie. A felhasznált paraméterek hibaeloszlásából kiindulva meg kell határozni a számított értékek hibáját és a modellérték eloszlásfüggvényét. Tendenciaként értelmezhető, hogy a meglévő adatbázisokat felülvizsgálják (13,14), kiegészítő méréseket végeznek eddig nem vizsgált izotópokra és/vagy élelmiszerekre (pl. ázsiai élelmiszerekre), de ezek időigényes folyamatok, másrészt ritka izotópokra a mérések kivitelezése nehézkes. A hiányosság részleges orvoslására a NAÜ MODARIA program 4. munkacsoportja (2012–2015, Modelling and Data for Radiological Impact Assessments) befejezte a TRS 472-ben megadott édesvízi Kd-adatbázisok és Kd-eloszlások frissítését (13). Több mint 2300 új érték 27 új elemhez került hozzáadásra az adatkészlethez, és 270 új Kd érték a TRS 472-ben már szereplő 25 elemhez. 49 kémiai elem esetében a Kd értékeket három szilárd-folyadék csere körülmény (adszorpció, deszorpció) szerint osztályozták. Ugyanakkor szárazföldi és erdei környezetre továbbra is adathiány jellemző.

A hidrokeokémiai analógia alapján pontosabb becslést lehet végezni a jelenleg nem ismert paraméterekre, továbbá a paraméterek eloszlásfüggvényeit is meg tudtuk határozni. A végeredmény szempontjából a referenciacsoportba tartozó egyének effektív dózisének kiszámításakor csak a lenyelésből származó belső sugárterhelést vettük figyelembe. A talajfelszínről esetlegesen reszuszpendálható szennyeződések belélegzéséből és a külső sugárterhelésből származó dózist lényegesen alacsonyabbnak tekintettük, ezért a jelenlegi eredményeknél figyelmen kívül hagytuk. A geoszféra belüli hosszú terjedési útvonalak miatt csak a hosszú felezési idejű, konzervatív izotópok és egyes uránizotópok és leányelemeik juthatnak el a bioszférába, és okozhatnak kimutatható radiológiai hatást a növény/állat és emberi populációra. A bizonytalansági elemzések azt mutatják, hogy a számított effektív dózisek várhatóan egyetlen nagyságrendre korlátozódnak, ami viszonylag alacsony a figyelembe vett időkeretekhez képest.

A bátaapáti tároló földtani és vízföldtani viszonyai olyan kedvezőek a szennyezőanyagok terjedésének korlátozása és késleltetése szempontjából, hogy a bioszférát kizárólag a hosszú felezési idejű és konzervatív viselkedésű radionuklidok (^{14}C , ^{36}Cl , ^{79}Se és ^{129}I) érhetik el aránylag magas koncentrációban, ami értékelhető effektív dózis kialakulásához vezet. Ugyanerre vezethető vissza a teljes dózissra számított kismértékű bizonytalanság is.

Megítélésünk szerint a bemutatott, a hidrokeokémiai periódusos rendszeren alapuló, megközelítés az adathiányos paraméter értékek meghatározására vonatkozóan szakmailag megalapozottabb, mint a kémiai elemek alapján történő eljárás, mivel figyelembe veszi, hogy természetes környezetben mely elemek milyen kémiai formákban mennyire hajlamosak megjelenni, egymást helyettesíteni. Ezt a megközelítést először hazánkban, illetve a radioaktív hulladék-tárolók hosszú távú biztonsági értékelésével kapcsolatban nemzetközi szinten mi alkalmaztuk először a bátaapáti tároló vonatkozásában. Ugyanakkor annak erősségei más, felszíni vagy felszínközeli tárolók radiológiai kockázatának, vagy hagyományos hulladéklerakók környezeti hatásainak kiértékelésénél még hatékonyabban alkalmazhatók. Az ionizáló sugárzás kockázatait más környezeti stresszorokkal szemben is szem előtt kell tartani, és a modellezés alkalmazása a környezettudomány más területein is kiaknázható. Az izotópok viselkedése más típusú modellezéseknél is hasznos összehasonlítási alapot jelenthet.

IRODALOM

1. IAEA TRS 364. IUR Handbook of parameter values for the prediction of radionuclides transfer in temperate environments. 1994.
2. IAEA TRS 472. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. 2010.
3. ICRP. 116. Conversion Coefficients for Radiological Protection Quantities for External Radiation Exposures. 2010.
4. ICRP 119. Compendium of dose coefficients based on ICRP Publication 60. Annals of the ICRP 41(Suppl.) 2012.
5. IAEA SRS No. 19. General models for use in assessing the impact of discharges of radioactive substances to the environment. 2001.
6. Kanyár, B., Pröhl G., Bergström U. Modelling of the radioactive daughter elements in soils with respect of radioactive waste disposal. Acad. and Appl. Res. in Military Sci (AARMS), 2004. 647-652.
7. Müller H., Pröhl G: ECOSYS-87: A Dynamic Model for Assessment of the Radioecological Consequences of Nuclear Accidents, Health Phys., 1993. 64(3):232-52.
8. Carrini F., Atkinson C.J., Collins C., Coughtrey P.J., Eged K., Fulker M., Green N., Kinnersley R., Linkov I, Mitchell N.G., Murlon C., Ould-Dada Z., Quinault J.M., Robles B., Stewart A., Sweeck L., Modeling and experimental studies on the transfer of radionuclides to fruit Journal of Environmental Radioactivity 2005.84. 271e284
9. Coughtrey, P.J., Jackson, D. and Thorne, M.C. Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems. Rotterdam. (EUR 8115 VI). 1985. ISBN 90 6191 293 8,
10. Voigt G., Pröhl G., Müller H. Experiments on the seasonality of the cesium translocation in cereals, potatoes and vegetables. 1991. Radiation and Environmental Biophysics. Volume 30, pages 295–303.
11. SKB 2013 Hydrogeochemical modelling and evolution of the groundwater types and processes in geosphere of SFR, SR-PSUR-13-30, 2014
12. Karlson S., Bergström U. Nuclide documentation Element specific parameter values used in the biospheric models of the safety assessments SR 97 and SAFE. 2002. SKB-R-02-28.
13. Boyer, P.; Wells, C.; Howard, B. Extended Kd distributions for freshwater environment. Journal of Environmental Radioactivity, 2018. 192. 128-142.
14. Barnett, C.L., Beresford, N.A., Walker, L.A., Baxter, M.; Wells, C., Copplestone, D. Transfer parameters for ICRP reference animals and plants collected from a forest ecosystem. Radiation and Environmental Biophysics, 2014. 53 (1). 125-149. <https://doi.org/10.1007/s00411-013-0493-6>.
15. Pröhl G., Olyslaegers, T. Zeevaert, B. Kanyár, P. Pinedo, I. Simón, U. Bergström, B. Hallberg, S. Mobbs, Q. Chen, R. Kowe. Biosphere Models for Safety Assessment of Radioactive Waste Disposal. 2004. GSF Bericht 06/04,
16. Railsback, L.B. An Earth Scientist's Periodic Table of the Elements and Their Ions: Geology 2003. 31, no. 9. p. 737-740.
17. Railsback, L. B. An Earth Scientist's Periodic Table of the Elements and Their Ions, version 4.8. <https://railsback.org/PT.html>

Készült a SOMOS Alapítvány támogatásával.