



**37. Országos Tudományos
Diákköri Konferencia
Fizika, Földtudományos és
Matematika Szekció
2025.**



**Dunántúli talajminták ^{210}Po és ^{210}Pb koncentrációjának
meghatározása**

Készítette: Vincze Dániel

Témavezető: dr. Tóth-Bodrogi Edit és Novák Máté

Mérnöki Kar, Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszék

A pályamunka lezárásának dátuma: 2024.12.06.

Kivonat

Az embert érő radioaktív sugárterhelés forrása a folyamatosan jelen levő háttérsugárzás, melynek legnagyobb része természetes eredetű. A természetes háttérsugárzás összetevői a földkérgi (terresztriális) eredetű radionuklidoktól származó források és a kozmikus sugárzás. A környezeti sugárzás szintje területenként eltérő lehet, területi adottságok, illetve a tengerszint feletti magasság egyaránt befolyásolja azt. A környezeti elemek monitorozása fontos feladat, hiszen a megnövekedett sugárzási háttér egészségügyi kockázattal járhat. A ^{238}U izotóp a földkéregben található bomlási sorok egyike, leányelemei közé tartozik a ^{210}Po izotóp, mely alfa-sugárzó izotóp lévén a szervezetbe bekerülve növeli a káros hatások kialakulásának valószínűségét.

A munkám két részből tevődött össze: első lépésben dunántúli talajmintákat vizsgáltam, melyekből félvezető detektoros gamma-spektrometriai módszerrel meghatároztam a főbb gamma-sugárzó izotópokból eredő aktivitást, majd meghatároztam azok radonexhalációs képességét. Munkám másik részében módszerfejlesztést végeztem, célom 3 kiválasztott talajminta ^{210}Po és ^{210}Pb aktivitáskoncentrációjának meghatározása volt különböző mintaelőkészítési módszereket vizsgálva. A kiválasztott mintákat különböző feltárási eljárással készítettem elő, majd kétféle izotópspecifikus (ioncserélő gyantán történő) elválasztást alkalmaztam. A kapott oldatokból a ^{210}Po aktivitáskoncentrációját spontán depozíciót követően félvezető (PIPS) detektoros alfa-spektrometriai módszerrel, a ^{210}Pb aktivitáskoncentrációját pedig folyadékszcintillációs (LSC) módszerrel határoztam meg. A jelenleg rutinszerűen alkalmazott minta-előkészítési módszer esetében a ^{210}Pb aktivitáskoncentrációját leányelemén, a ^{210}Po izotópon keresztül határozzák meg, mely mérés időtartama egy-másfél év. Az általam vizsgált mintaelőkészítési módszerek rövidebb minta előkészítési és mérési időt biztosíthatnak, alkalmazásukkal lehetővé válik a két izotóp együttes meghatározása.

Kulcsszavak: ^{210}Pb , ^{210}Po , talajminta, alfa-spektrometria, LSC

Tartalomjegyzék

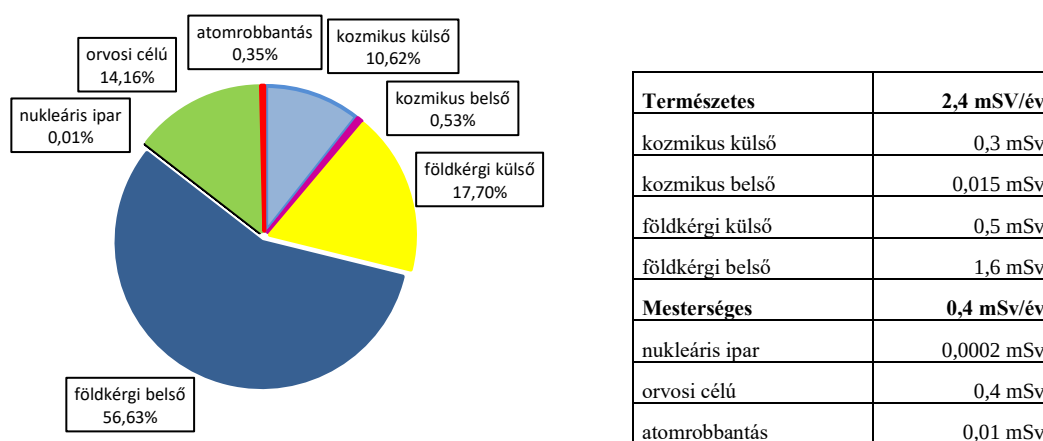
.....	1
1 Bevezetés.....	4
2 Irodalmi áttekintés.....	5
2.1 Főbb gamma-sugárzó radioizotópok.....	6
2.2 Radon tulajdonságai, jellemzői.....	6
2.3 Ólom tulajdonságai, jellemzői.....	6
2.4 Polónium tulajdonságai, jellemzői.....	7
2.5 ^{210}Pb és ^{210}Po radioizotópok sugárzási energiái.....	8
2.6 Mérési módszerek.....	8
2.6.1 Gamma-spektrometria.....	8
2.6.2 Radonexhaláció meghatározása.....	10
2.6.3 Alfa-spektrometria.....	11
2.6.4 Folyadékszintillációs spektrometria.....	12
2.7 Mintavételi terület jellemzése.....	14
3 Kísérleti rész.....	15
3.1 Mintavételezés.....	15
3.1.1 Mintaelőkészítés.....	16
3.1.1.1 Gamma-spektrometriai mintaelőkészítés.....	17
3.1.1.2 Radonexhalációs mintaelőkészítés.....	18
3.1.1.3 Alfa-spektrometriai és LSC mintaelőkészítés.....	18
3.2 Alkalmazott mérések és mérőműszerek.....	27
3.2.1 Félvezető detektoros gamma-spektrometria.....	27
3.2.2 Fajlagos radonexhaláció és emanációs tényező meghatározása.....	30
3.2.3 Félvezető (PIPS) detektros alfa-spektrometria.....	31
3.2.4 LSC módszer.....	35
4 Eredmények, következtetések.....	40
4.1 Talajminták főbb gamma-sugárzó izotópjainak meghatározása.....	40
4.2 Talajminták radonexhalációjának értékei.....	43
4.3 Talajminták ^{210}Po aktivitáskoncentrációjának meghatározása alfa-spektrometriai módszerrel.....	45
4.4 Talajminták ^{210}Pb koncentrációjának meghatározása LSC segítségével.....	48
5 Összefoglalás.....	51
Irodalomjegyzék.....	53
Mellékletek.....	55

1 Bevezetés

A minket körülvevő sugárzás lehet természetes vagy mesterséges eredetű, környezetünk minden elemében folyamatosan jelen van az élő és az élettelen dolgokban egyaránt.

A természetes háttérsugárzásból származó embert érő sugárterhelés világátlagos évi 2,4 mSv [1], forrása a földkéreg és a világűr. A földkérgi (terresztiális) sugárzás nagy részét a radioizotópok közül az ^{238}U és ^{232}Th bomlási sorok elemei, valamint a hosszú felezési idejű izotópok, mint például a ^{40}K izotópok teszik ki. Az űrből származó kozmikus eredetű sugárzások a Napból és a Galaxisból erednek, ezek intenzitása függ a légkör elnyelőképessége miatt a tengerszint feletti magasságtól és a szélességi körtől. A radioaktív anyagok körül vesznek bennünket, külső sugárterhelést okoznak, valamint a szervezetünkbe bekerülve már belső sugárterhelést jelentenek.

A mesterséges sugárterhelés abból adódik, hogy egyre szélesebb körben alkalmazott ionizáló sugárzást kibocsátó forrást és berendezést alkalmaznak, elsősorban orvosi, ipari, energetikai és kutatási céllal. Ide tartozik még a nukleáris fegyverkezésből eredő sugárterhelés is, így a mesterséges eredetű sugárterhelés, mely éves átlagos értéke 0,4 mSv, ami a különböző területeken jelentősen eltérhet, akár 3-4 mSv-t is elérheti [2]. Ennek legnagyobb része az orvosi eredetű alkalmazásokból eredő sugárterhelés.



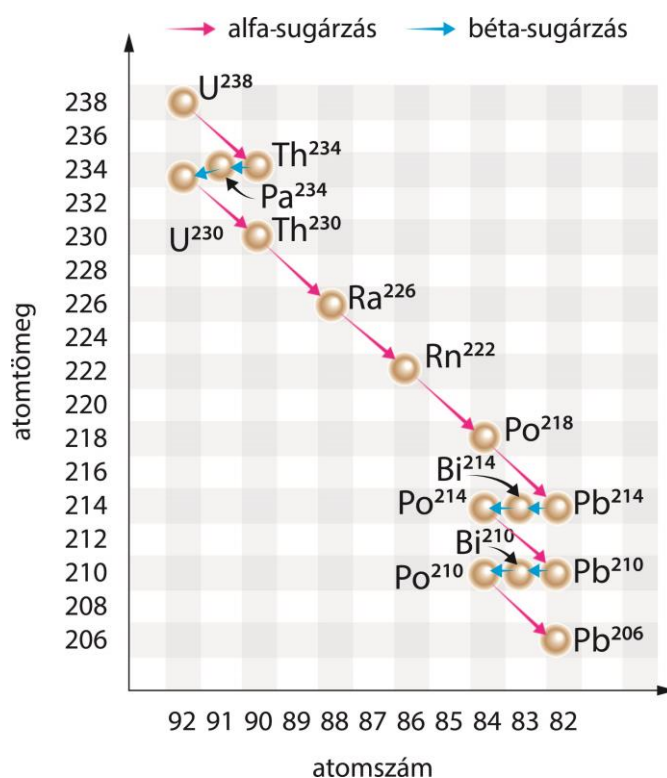
1. ábra: A Föld népességének főbb sugárterhelési forrásai és átlagértékei [1]

Az embert érő sugárterhelés értéke tehát függ a minket körülvevő sugárzás mértékétől. A különböző környezeti elemek monitorozása fontos feladat, különösen azokon a területeken, ahol egy-egy izotóp a radioaktív egyensúlyok megbomlása vagy egyéb befolyásoló tényezők

pl. az emberi tevékenység hatására feldúsul, vagy pedig olyan ipari tevékenység folyik, ami a háttérsugárzás értékén felül jelentkezik. A fennálló sugárzási helyzetek felderítése a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszékén kiemelt kutatási terület, ehhez a kutatáshoz csatlakoztam be én is. A munka során célom egy dunántúli terület talajmintáinak főbb gamma-sugárzó izotópjainak mérése félvezető detektoros gamma-spektrometriai módszerrel, azok radonexhalációjának vizsgálata akkumulációs technikával, majd 3 talajminta $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$ aktivitáskoncentrációjának meghatározása alfa-spektrometriai eljárással. A jelenleg rutinszerűen alkalmazott mérési módszer a két izotóp meghatározására kb. egy évet vesz igénybe, célom egy olyan mintaelőkészítési módszer alkalmazási lehetőségeinek vizsgálata, mellyel ez az időtartam lényegesen lerövidíthető.

2 Irodalmi áttekintés

A földkérgi radioaktív izotópok közül az uránnak a leggyakrabban előforduló izotópja az ^{238}U , mely elszórtan megtalálható a földkéregben, nagyon hosszú felezési idővel rendelkezik (4,51 milliárd év), és átlagosan 3-5 g/t [3] koncentrációban van jelen lényegében minden talajban és üledékben. A ^{238}U izotóp bomlási sorában tartozik a ^{210}Pb és a leányeleme a ^{210}Po , mely bomlási sor végén egy stabil izotóp a ^{206}Pb keletkezik. A ^{210}Pb hosszú felezési idejű (22,3 év) izotóp, míg a leányeleme a ^{210}Po viszonylag rövid idő alatt elbomlik (138,4 nap).



2. ábra: ^{238}U bomlási sora [4]

2.1 Főbb gamma-sugárzó radioizotópok

A földkérgi eredetű külső sugárterhelés a földkéregben megtalálható gamma-sugárzást kibocsátó radionuklidoktól származik. Ezek nagy mértékben az ^{238}U és ^{232}Th bomlási sorainak elemei, és a ^{40}K izotóp, melynek aktivitáskoncentrációja a legnagyobb. A talajok, kőzetek mindig tartalmaznak valamilyen uránt, így rádiumot, tóriumot és káliumot. A gamma-sugárzás a talaj felső 30 cm-jében előforduló radionuklidok esetében számottevő, mivel mélyebben a talajtakaró teljesen árnyékol. Az ^{238}U és ^{232}Th leányelemei között alfa- és béta-bomló izotópok vannak jelen, melyek kísérő jelensége lehet a nagy áthatolóképességű gamma-sugárzás. A ^{238}U bomlási sorát a gamma-sugárzás szempontjából csak a ^{226}Ra -tól vesszük figyelembe, mivel az izotópok bomlásaik ezen elemtől kezdve bocsátanak ki gamma-fotonokat.

2.2 Radon tulajdonságai, jellemzői

A bomlási sorok egyik jelentős eleme a radon, az egyedüli gáz halmazállapotú elem, mely egy mobilis nemesgáz, így könnyen áthatol a szilárd halmazállapotú közegek repedésein is és kijut a levegőbe. A periódusos rendszer VIII. főcsoportjában lévő 86-os rendszámú elem, így szerkezetéből adódóan nem képes kémiai kötést kialakítani más elemekkel. Vízben és szerves oldószerekben jól oldódik hőmérséklettől függően. Stabil izotópja nincs, de a természetben három izotópja fordul elő a ^{238}U bomlási sorában az ^{222}Rn (radon), felezési ideje 3,824 nap, a ^{235}U bomlási sorában az ^{219}Rn (aktinon), felezési ideje 3,9 s, míg a ^{232}Th bomlási sorában az ^{220}Rn (toron), felezési ideje 55,6 s. A radon közvetlen anyaeleméből a rádium izotópból alfa-sugárzással bomlik, amíg el nem éri a stabil ólomizotópokat. A radon fő forrása a környezetünkben a talaj, az építőanyagok, a házba bevezetett víz, a külső levegő, a földgáz is lehet.

Az embert érő külső alfa-sugárzásnak nincs igazán károsító hatása, mivel kicsi hatótávolságú. A radonnak és a rövid felezési idejű alfa-bomló leányelemeinek (polónium, ólom, bizmut) elsősorban akkor jelentkezik az egészségkárosító hatása, ha a szervezetbe bejutva a sejteket közvetlenül támadja [5].

2.3 Ólom tulajdonságai, jellemzői

Az ólom a periódusos rendszer 82-es rendszámú eleme, a periódusos rendszer 14-es periódusában és 6-os csoportjában helyezkedik el. Elemi állapotban jól megmunkálható, nyújtható, forrasztható, korrózióálló nehézfém, mely ezüstös szürke színű. Az ólomnak 49 izotópja ismert, melyek közül csak 4 stabil, a ^{204}Pb , ^{206}Pb , ^{207}Pb , ^{208}Pb .

Az ^{210}Pb izotóp egy természetes radioaktív izotóp, amely az ^{238}U bomlási sorának bomlásterméke, így megtalálható a természetes környezetünkben. A ^{210}Pb izotóp felezési ideje 22,3 év. A ^{222}Rn inert gáz egy része, amely a ^{226}Ra bomlásterméke (felezési ideje 1602 év) a talajban, a légkörbe kerül, ahol rövid élettartamú radionuklidok sorozatán keresztül bomlik le ^{210}Pb -re. A légkörben lévő ^{210}Pb atomok könnyen kötődnek a levegőben lévő részecskékhez, amelyek nedves és száraz ülepedéssel gyorsan eltávolíthatók a szárazföldről és a vizekről. A talajban és üledékekben felhalmozódó ^{210}Pb -et hordozó nélküli ^{210}Pb -nek nevezik, hogy megkülönböztethető legyen a ^{226}Ra kiindulási radionuklid in situ bomlásából származó hordozós ^{210}Pb -től [6].

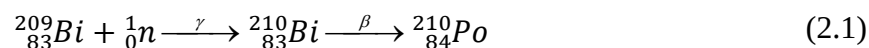
Az ólom és vegyületei is mérgező anyagok, a szervezetbe bejutva gátolja a létfontosságú fémeket (vas, cink, kalcium) felszívódását, és sejtméregként viselkedik, idegrendszeri elváltozást és agyi károsodást okozhat. A szervezetből nem ürül ki, felgyülemlik. A ^{210}Pb izotóp ionizáló sugárzása sejtkárosodást okoz [6].

A ^{210}Pb radioaktív izotópot az uránérc kormeghatározására használják.

2.4 Polónium tulajdonságai, jellemzői

A polónium a 84-es rendszámú kémiai elem a periódusos rendszer 16-os periódusában és 6-os csoportjában helyezkedik el. Viszonylag alacsony olvadáspontú (254°C) és forráspontú (962°C) elem, fémes jellegű, ritka és nagyon erősen radioaktív. Kémiai tulajdonságai hasonlítanak a tellúréra és a bizmutéra, uránércekben fordul elő. A polóniumnak 43 izotópja ismert 194-218 atomi tömegegység között, mindegyik radioaktív, a leggyakoribb a természetben a ^{210}Po , mely az U-238 bomlási sor utolsó radioaktív eleme, bomlásakor alfa-részecskét bocsát ki és Pb-206-á bomlik. A kibocsátott alfa-részecskék nagy energiájúak, de rövid hatótávolságúak. A bomlási sorban található még másik két polónium izotóp, a ^{218}Po és a ^{214}Po , melyek felezési ideje nagyon rövid 3,05 perc és $1,62 \cdot 10^{-4}$ s, ezért ezeket nem lehet elkülöníteni az uránérctől. A ^{210}Po izotóp felezési ideje 138,4 nap, fajlagos aktivitása igen nagy, 1 mg annyi alfa részecskét bocsát ki, mint 13 t ^{238}U -as izotóp és 1 g ^{210}Po izotóp 140W teljesítményt ad le. Néhány curie (Ci) aktivitású ^{210}Po kékes színű ragyogást bocsát ki a levegőmolekulák gerjesztése miatt. A ^{210}Po alfa részecskét bocsát ki, a bomlást kísérheti gamma-sugárzás kibocsátása is, ez azonban csak minden százvezredik esetben következik be, ezért gamma-spektrometriai vizsgálattal a meghatározása nem lehetséges [7].

A polónium nagyon ritka és érceiből nehezen előállítható elem, viszont a kutatók rájöttek (1934-ben), hogy mesterséges úton előállítható a ^{210}Po -es izotóp, a bizmut természetes izotópjának neutronnal történő bombázásával.



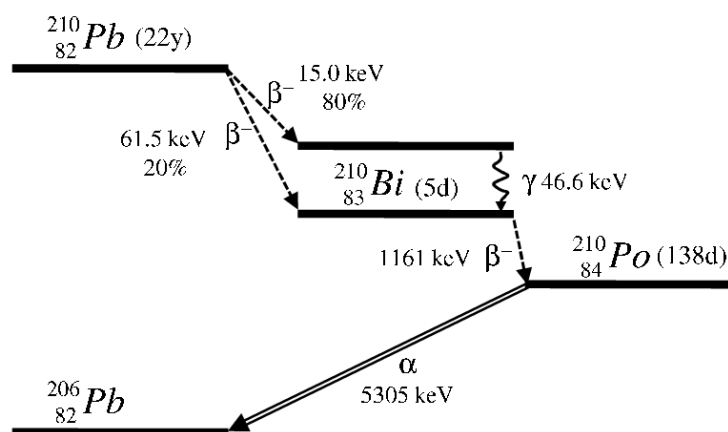
Ezzel az eljárással csak évi 100 g-nyi ${}^{210}\text{Po}$ -ot állítanak elő [7].

A ${}^{210}\text{Po}$ izotópot neutronforrásként használják fel berilliummal keverve, valamint műholdak energiaforrásaként, és a holdjárók belső hőforrásaként. A tiszta alfa sugárzóknak izotópoknak nagy előnyük, hogy nem igényelnek speciális védőberendezést, mivel a hatótávolságuk minimális [7].

Természetes úton bejutott polóniumnak, ami csekély mennyiségű, gyakorlatilag nincs egészségügyi hatása, mivel az 50-90%-a az emésztőrendszeren keresztül kiürül, a maradék rész a vérrel eloszlik a szervezetben és fokozatosan kiürül a vizelettel és a széklettel. A ${}^{210}\text{Po}$ szervezeten belüli biológiai felezési ideje 50 nap. A polónium csak abban az esetben jelent veszélyt, ha nagyobb mennyiség kerül a szervezetbe táplálékkal, vízzel, nyílt seben keresztül [8].

2.5 ${}^{210}\text{Pb}$ és ${}^{210}\text{Po}$ radioizotópok sugárzási energiái

A ${}^{210}\text{Pb}$ bomlása során a béta-sugárzási energia 15-61,5 keV, a ${}^{210}\text{Po}$ alfa-sugárzási energia 5 305 keV.



3. ábra: ${}^{210}\text{Pb}$ bomlási sora [9]

2.6 Mérési módszerek

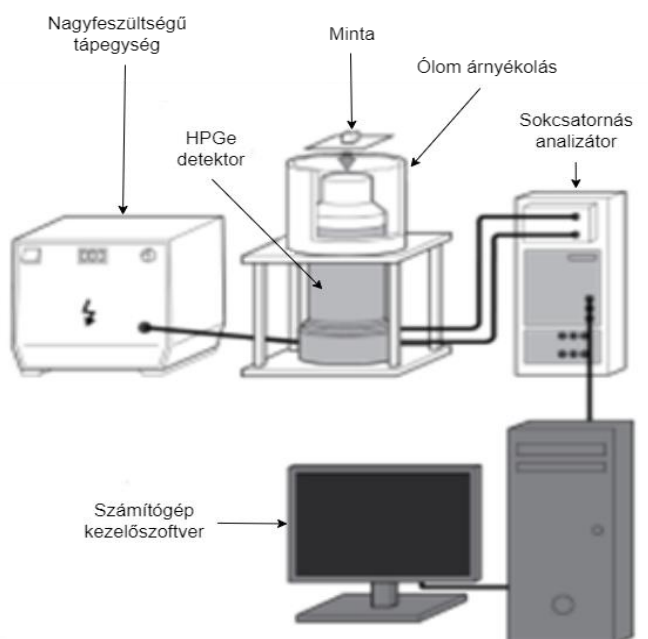
2.6.1 Gamma-spektrometria

A gamma-spektrometria a gamma-fotonok diszkrét energiájának detektálásán alapul, mivel az emittált gamma-fotonok energiája meghatározott értékű, az atommagok egyedi gerjesztett

állapotba kerülnek és így a legerjesztődés során a keletkező gamma-foton energiája a gamma-sugárzó izotópok azonosítására alkalmas.

A gamma-spektrometriában általában Ge és a Si alapanyagú félvezető-detektort alkalmaznak. A félvezetők kristályszerkezetébe 3 vagy 5 vegyértékelektronnal rendelkező szennyezőt teszünk, akkor kialakulnak a p-típusú (elektronhiányos) és az n-típusú (elektrontöbblet) félvezetők, melyek szoros érintkezése esetén semlegesítődik, a töltéskülönbség és a létrejött réteg a kiürített tartomány. Ezen rétegben a töltések száma megegyezik, és ez képezi a detektor érzékeny térfogatát. Ha az ionizáló részecske ide kerül, akkor ott szabad töltéshordozók jönnek létre, és a réteg vezetővé válik, ami áramimpulzus formájában érzékelhető. Mivel a létrejövő töltéshordozók száma arányos az őket kiváltó részecske energiájával, így a félvezető detektor energiaszelektív mérésre alkalmas. A gamma-spektrum felvételekor a detektorba érkező fotonok információt adnak az őket kibocsátó nuklid minőségéről, ill. a kapott csúcs alatti területből az adott nuklid mennyiségéről.

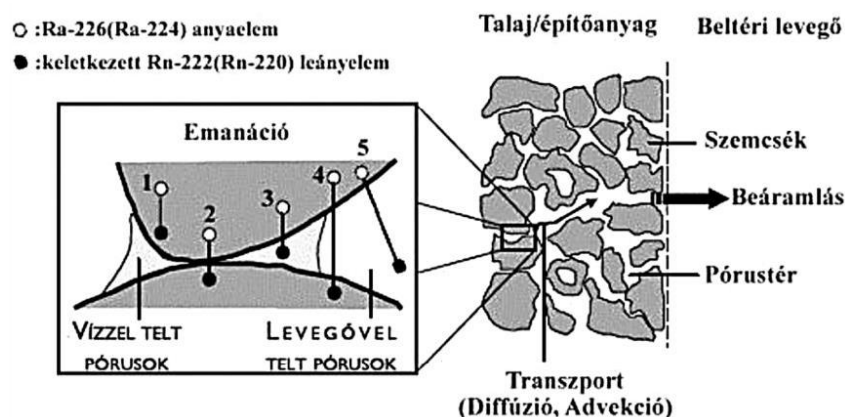
A gamma-spektrométerek detektorból, előerősítóból, erősítóből, nagyfeszültségű tápegységből és egy- vagy sokcsatornás amplitúdóanalizátorból állnak. A kapott impulzusokat, jeleket analizáljuk. A sokcsatornás analízátor feladata, hogy megmérje a detektorból érkező elektromos impulzusok nagyságát és az alapján osztályozza azokat, megszámlálja és ez alapján az adatgyűjtő és feldolgozó számítógép kirajzolja a spektrumot. A rendszer részét képezi egy ólomtorony is, mely alacsony háttérű kamra, mely a laboratórium háttérsugárzását minimalizálja [10].



4. ábra: Gamma-spektrométerek felépítése

2.6.2 Radonexhaláció meghatározása

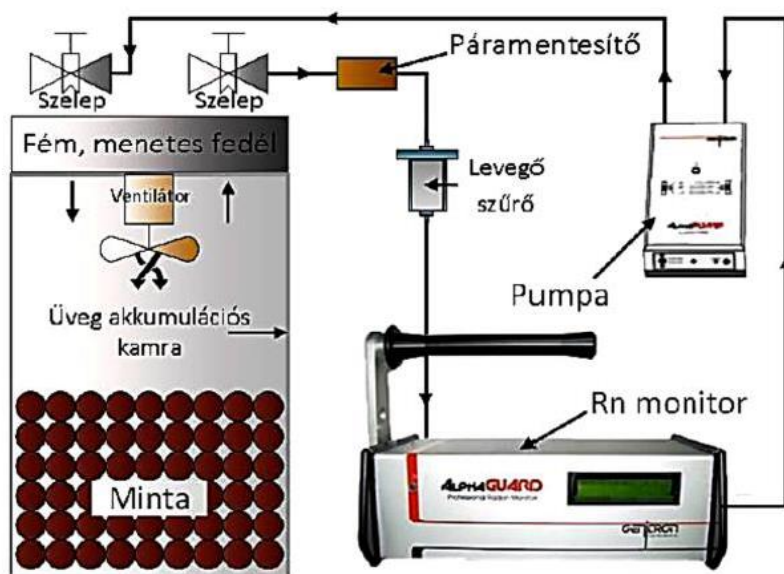
A ^{238}U bomlási sorában lévő ^{226}Ra leányeleme a radon. A rádiumatom a közetszemcsékbe egyrészt a szemcsé felületén, másrészt a térfogatában helyezkedik el. A rádium elhelyezkedésétől és a visszalökődés irányától függően a radonatom vagy a közetszemcsében, vagy a szemcsék közötti pórustérben áll meg. A radonatom kijutását a szemcséből a pórustérbe emanációnak, míg a radonatomok kilépését az atmoszférába a pórustérből exhalációnak hívjuk.



5. ábra: Radon pórustérbe jutásának lehetséges módjai [5]

A felezési ideje miatt, mely a ^{222}Rn -nek 3,824 nap, a koncentrációja a levegőben a magassággal egyre csökken [5].

A radonexhaláció meghatározásának egyik módja, az akkumulációs mérési módszer, mely lényege az exhalálódott radont össze kell gyűjteni egy zárt edénybe, majd az eltelt idő, a bomlás és a radon-koncentráció ismeretében meghatározható az exhaláció mértéke [5].



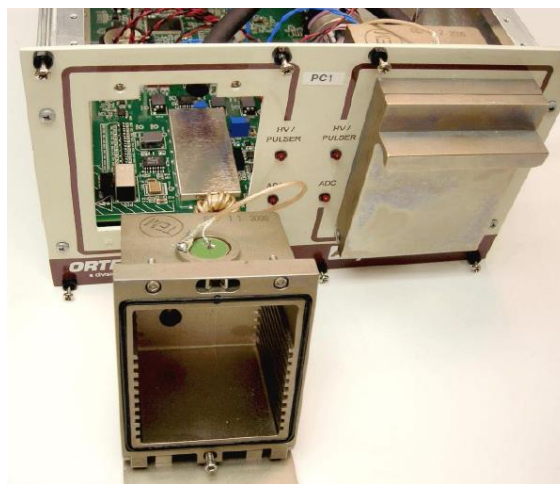
6. ábra: AlphaGUARD 2000 radonexhalációs mérőrendszer vázlata [5]

Az akkumulációs térben található radon-koncentráció, nem lineáris, hanem egy határértékhez tart. Az exhalálódott radon mennyiségét nagymértékben meghatározza a diffúziós úthossz, ami az a rétegvastagság, ami jellemzi a diffúziós mechanizmus útját a radon szilárd fázisából kijutása során [5].

2.6.3 Alfa-spektrometria

Az alfa-spektrometriai mérések során félvezető (PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon)) detektorral felszerelt mérő műszer az elterjedt, ahol az ionizáció a szilárd, félvezető anyagban jön létre. Az alfa-részecskék elnyelődése miatt, a detektort a mintához közel kell elhelyezni. A félvezető detektorok működése a sávmélettal magyarázható. A félvezető anyagok esetében az atomokhoz kötött vegyértékelektronok betöltött vegyértéksávja és a szabad elektronok vezetési sávja között energetikailag nem megengedett, ún. tiltott sáv van. Ezen a sávon nagy tisztaságú félvezető esetén elektronok nem tartózkodhatnak. Ha a félvezető anyagok kristályszerkezetébe 3 vagy 5 vegyértékelektronnal rendelkező ún. szennyező anyag kerül, akkor p-típusú félvezetők, elektronhiányosak, vagy n-típusú esetén elektrontöbblettel rendelkeznek. Ha egy n és p-típusú félvezető anyagot szoros érintkezésbe hozunk, akkor kialakul az érintkezési felületükön semlegesítődik a töltéskülönbség, az ún. kiürítési tartomány alakul ki. Itt megegyezik a pozitív és negatív töltések száma, mely a detektor érzékeny térfogata. Ha alfa-részecske ebbe az érzékeny térfogatba érkezik, szabad töltéshordozók alakulnak ki, mely során a réteg vezetővé válik, és ez áramimpulzusként érzékelhető. Az áramimpulzus jel a feldolgozáshoz erősítő rendszerre kerül, mely során a felerősített jel jelsorozatként lép ki, és sokcsatornás analízátor dolgozza fel az adatokat. A detektorhoz kapcsolt számítógépen pedig kiértékelésre kerül a kapott alfa-spektrum.

Ez a rendszer alkalmas mennyiségi meghatározásra, az időegység alatt regisztrált részecskék számából az adott izotóp aktivitására (az alfa-spektrum csúcsainak nagysága arányos a részecske energiájával), és alkalmas minőségi meghatározásra is, mert a különböző radionuklidok alfa-részecskéiket különböző jellemző energián adják le, így a spektrum csúcsának energiaszintje alapján következtetni lehet a kibocsátó izotópra [11].



7. ábra: Integrált Alpha Duo spektrométer [12]

2.6.4 Folyadékszintillációs spektrometria

A folyadékszintillációs spektrometriát környezeti minták mérésére használják, általában is béta-energiájú és kis aktivitású radioizotópok detektálására.

A szcintillációs detektorok működési elve, hogy a szcintilláló anyagok (szervetlen kristályok, szerves kristályok, oldatok) sugárzás hatására a mozgási energiáját fényfelvillanássá alakítják át. Fontos tulajdonságuk, hogy az ionizáló részecskék energiájával arányos a felvillanás intenzitása, tehát spektroszkópiai célra is alkalmazhatók. A sugárzásnak fényenergiává való átalakítása közvetlenül valósul meg gyors töltött részecskék (pl.: protonok, alfa-részecskék és elektronok) esetében. A szcintillátorhoz optikailag csatolt fotoelektromos eszköz (fotoelektronsokszorozó) a fényjelet elektromos jellé alakítja és felerősíti. Egyik fajtája a folyadékszintillációs detektor (LSC), mely speciális detektor, mivel a szcintillátor anyaga folyadék [13].



8. ábra: Tri-Carb 3170TR/SL LSC detektor [14]

A folyadékban oldott radioaktív izotópok alfa- és béta-sugárzását nagy hatásfokkal észlelik, bár az alfa-sugárzás nagy önabszorpciós hajlama miatt főként béta-sugárzó radionuklidok mérésére használják.

A folyadékszintillációs számlálás standard laboratóriumi módszer, ahol a szcintillátor anyaga egy speciális koktél. A kibocsátott energia hatékony átvitele érdekében az LSC koktéloknek két alapvető összetevőből kell állniuk, melyek lehetnek aromás, szerves oldószer vagy fluorkoktélok.

A működési elve, hogy miután az aromás oldószermolekulákat a radioaktív bomlásból felszabaduló energián keresztül gerjesztetik, az energia ezután a szcintillátorba kerül. A szcintillátorokon keresztül elnyelt energia az elektronok gerjesztett állapotait hozza létre, amelyek az alapállapotba bomlanak le, és a szcintillátorra jellemző fényimpulzust hoznak létre. A fényt a folyadékszintillációs számláló fotoelektronsokszorozó csőve átalakítja a beérkező fotonokat elektromos jellé.

Előnye, hogy a detektor térfogata néhány cm^3 -től dm^3 -ig terjedhet és az alakja is sokféle lehet, valamint nagy hatásfokkal detektálja a béta-sugárzást. Hátránya lehet a kioltási jelenség, amikor a radioizotóp által kibocsátott energia nem alakul át, nem gerjeszt további fotonokat, és ezért a számláló műszer nem érzékeli. Azon hatások, melyek miatt a gerjesztési energia egy része nem jut el a szcintillátorhoz a kémiai kioltás hatásai, mely során a béta sugárzás energiájáról kapott információi hibás lesz, ami csökkenti a mérés hatásfokát. A mintában lévő színes anyagok okozzák a szín kioltást, ami szintén a kimenő jel csökkenéséhez vezet. A kioltás jelenségét a megfelelő szcintillációs folyadék alkalmazásával lehet minimalizálni.

A szcintillációs koktélok tartalmaznak elsődleges és másodlagos szcintillátort, oldószert, emulgeátort és egyéb adalékokat. Elsődleges szcintillátor általában fenil- és oxazol-gyűrűket tartalmazó aromás molekulák, míg a másodlagos szcintillátor is aromás gyűrűket tartalmazó vegyület. Feladatuk eltérő, az elsődleges szcintillátor a sugárzási energiát átalakítja fény fotonokká, melynek hullámhossza a kék és az ultraibolya fény tartományába esik, addig a másodlagos szcintillátorokban a primer fotonok hullámhosszának eltolódása történik, hogy a fotoelektronsokszorozó fotokatódjának megfelelő érzékenységtartományába essenek. Az oldószerek is általában aromás vegyületek, hogy biztosítsa a szcintillátorok megfelelő oldhatóságát. Az emulgalószereket azért alkalmazzák, hogy módosítsa az oldat vizes, savas, lúgos vagy nagy sótartalmú oldatokra vonatkozó felvevőképességét. Az adalékokkal a tulajdonsága módosítható vagy javítható, általában naftalint alkalmaznak, mely a mérendő jelalakot befolyásolja [13].

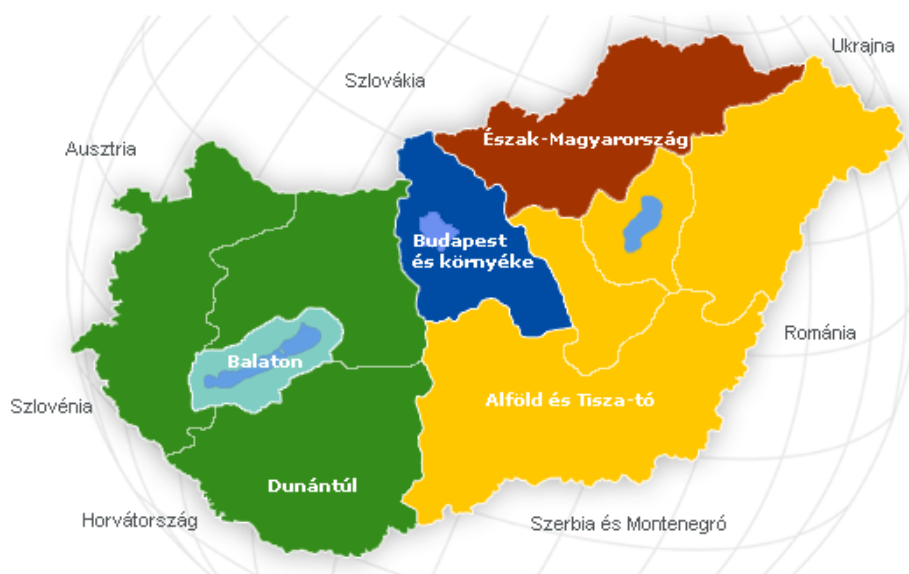
2.7 Mintavételi terület jellemzése

Munkám során dunántúli talajmintákat vizsgáltam. A Dunántúl Magyarország nyugati részén terül (9. ábra), a terület nem csak turisztikai szempontból jelentős, de mezőgazdasági, állattenyésztési, erdőgazdálkodási és ipari szempontból is.

A Dunántúlnak változatos a talajtakarója, mivel ezen a területen fekszik négy földrajzi nagytáj, a Kisalföld, a Nyugat-magyarországi peremvidék, a Dunántúli-dombság, valamint a Dunántúli középhegység. A Dunántúlon megtalálhatók a zonális (éghajlati viszonyok miatt kialakult) talajokból a fakó és barna erdőtalajok, valamint a minőségi talajok közül a mezőszéki (löss) talaj. Megtalálható ezen a területen az azonális, azaz az alapkőzet és a vízviszonyok miatt kialakult talajokból a váztalajok csoportjából az öntéstalaj, a köves sziklás váztalaj, a láptalajok közül a tőzegetes láptalaja, a réti talajok közül a réti talaj és a szikes talajok közül a meszes-sós szikes talaj is [15] [16].

Látható, hogy a Dunántúl változatos domborzati viszonyai miatt a talaj is változatos az egyes részekén.

A Dunántúlon jelentős volt régebben a bányászati tevékenység, melyre több iparág is épült pl. bauxitbányászatra, a timföldgyártás és alumínium kohászat, szénre, lignitre az energiaipar stb., melyek többsége a költséges bányászat miatt napjainkra bezárt, viszont a talajban az ipari tevékenységek miatti szennyezések még megtalálhatók. Ezeken az ipari területeken jelentősebb lehet a radionuklidok jelenléte.



9. ábra: Magyarország nagy régiói [17]

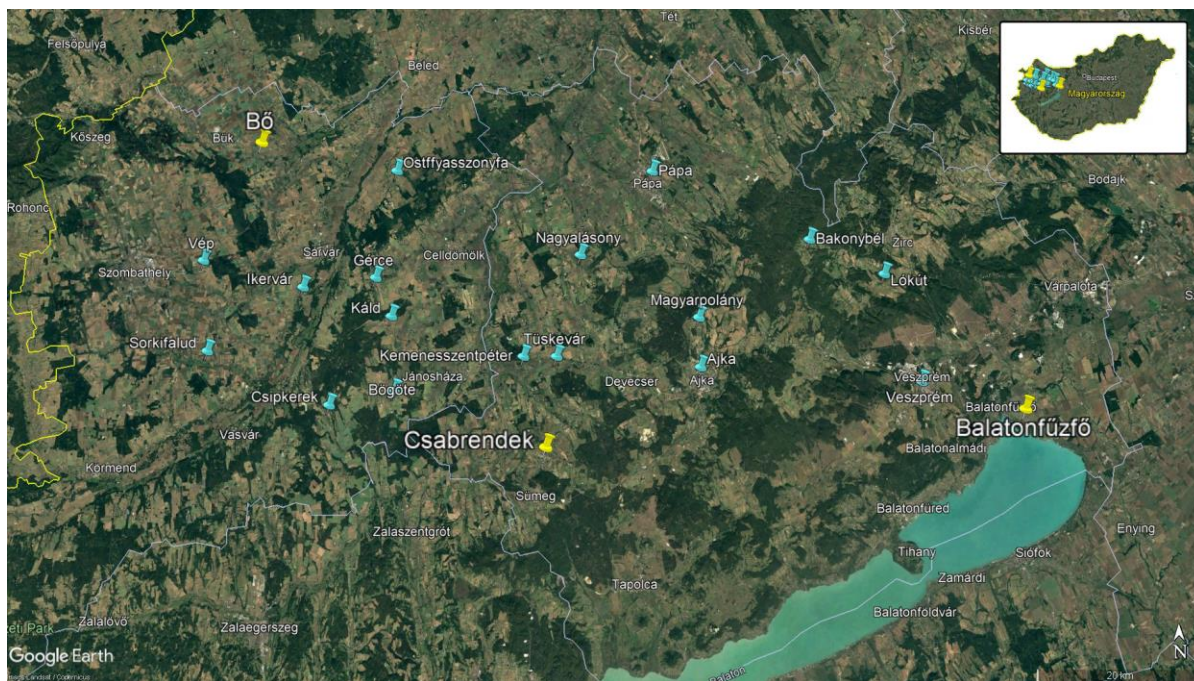
3 Kísérleti rész

3.1 Mintavételezés

A talajmintavétel, egy olyan tevékenység, amikor a talajból kis mennyiségű mintát vesznek, majd azt a laboratóriumban a célnak megfelelő módon vizsgálják. A minta az adott területre jellemző tulajdonságok, tápanyagok, valamint szennyeződések meghatározására alkalmas. A talajmintavételi technikák különbözőek lehetnek, attól függően, hogy a vizsgálatokhoz mire van szükség, lehet, kézi szerszámmal, gépi berendezésekkel venni, valamint lehet véletlenszerű, rácsos, mélységi a mintavétel.

A jelen kutatás eredményének megfelelőségéhez, elegendő a kézi és véletlenszerű mintavétel. A mintavétel talajmintavételi kanállal került végrehajtásra, mely biztosítja a megfelelő mennyiségű és mélységű minta vételét.

A Dunántúl északi részén gyűjtöttem a talajmintákat 20 településről, melyek változatos talajtípussal rendelkeznek, agyag, lösz, homok, folyóvízi üledék, lejtőüledék.



10. ábra: Dunántúli mintavételi települések elhelyezkedése

1. táblázat: Dunántúli talajvételi helyek és talajtípusai

Település	Talajtípus
Ajka	Folyóvízi üledékek
Bakonybél	Folyóvízi üledékek
Balatonfüzfő	Agyag
Bő	Lejtő- (deluviális, csuszamlásos, omlásos, szoliflukciós) képződmények
Bögöte	Agyag
Csabrendek	Futóhomok
Csipkerek	Agyag
Gérce	Lejtő- (deluviális, csuszamlásos, omlásos, szoliflukciós) képződmények
Ikervár	Folyóvízi üledékek
Káld	Homok
Kemenesszentpéter	Folyóvízi üledékek
Lókút	Löszösszlet (löss, homokos lösz, löszös homok, paleotalaj)
Magyarpolány	Lejtő- (deluviális, csuszamlásos, omlásos, szoliflukciós) képződmények
Nagyalásny	Folyóvízi üledékek
Ostffyasszonyfa	Folyóvízi üledékek
Pápa	Folyóvízi üledékek
Sorkifalud	Folyóvízi üledékek
Tüskevár	Folyóvízi üledékek
Vép	Löszösszlet (löss, homokos lösz, löszös homok, paleotalaj)
Veszprém	Mészko, Márga, Dolomit

A települések földmintáinak vizsgálata során meghatároztam a főbb gamma-sugárzó radioizotópok mennyiségét, valamint a radonexhaláció mértékét. A 20 db mintából 3 különböző típusú talajjal rendelkező települést választottam a ^{210}Pb és ^{210}Po mérések elvégzéséhez. A választott helységek Balatonfüzfő, Bő, Csabrendek, melyek rádium és radon mérésből származó eredményei két település esetén Balatonfüzfő és Csabrendek kiemelkedően magas értékeket mutattak, míg Bő település talajmintájának mért értékei átlagosak.

3.1.1 Mintaelőkészítés

A talajminta feltárás előtti előkészítése két fázisból állt, egyik a szárítás, a másik pedig a homogenizálás. A vizsgálandó talajmintákat a laborba való beérkezést követően papírra, vékony rétegben ki kell teríteni, ha tartalmaz nagyobb rögöket, azt kézzel felaprítani, valamint a gyökereket, növényi maradványokat el kell távolítani. A mintákat szárító szekrénybe helyez-

zük, ahol tömegállandóságig szárítjuk, 110 °C-on. A száraz mintát fel kell aprítani, attól függően, hogy tartalmaz-e 2 mm-nél nagyobb darabokat, mivel megváltozik a feldolgozás módja. Ha a talajminta kavicsot, vagy egyéb anyagot nem tartalmaz, úgy azt 2 mm-es lyukú szitán átszitáljuk, és a fennmaradó maradványokat (szalma, gyökér stb.) eldobjuk. Ködöttebb talajokat porcellán dörzsmozsárban addig aprítjuk, amíg az egész talaj átmegy a szitán. A szitán fennmaradó részeket itt is eldobjuk. A 2 mm-es szitán átment talajt azután alaposan összekeverve, homogenizálva, száraz önzáró zacskóba tesszük, mindig mellé téve a felvételnél készített mintajelölőt [18].



11. ábra: Földminta, szárítószekrények

3.1.1.1 Gamma-spektrometriai mintaelőkészítés

A tömegállandóságig szárított mintákat Marinelli-edénybe tettem és lezártam teflonszalagos szigetelőszalaggal, hogy biztosítsam a légmentes lezárását. A tömegét megmértem és félre tettem 30 napra, a szekuláris egyensúly beálltáig.



12. ábra: Marinelli-edény

3.1.1.2 Radonexhalációs mintaelőkészítés

A tömegállandóságig szárított mintából kb. 0,5 kg-ot, zárható ismert tömegű akkumulációs kamrába tettem, amit szigetelőszalaggal légmentesen lezártam. A laborban alkalmazott akkumulációs kamra egy megfelelően zárható 1 literes üveg edény, melynek tetején két zárható csap található. A fedőn lévő egyik csapra az Ar palack csövét csatlakoztattam, majd megnyitottam a csapot és 2-3 percig áramoltattam az argon gázt. Ezt követően lezártam a csapot, majd feljegyeztem az elzárás pontos idejét. A mintát 3-4 napig elzárva tartottam.



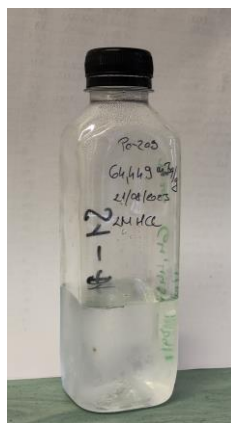
13. ábra: Akkumulációs kamra

3.1.1.3 Alfa-spektrometriai és LSC mintaelőkészítés

Az előzetesen előkészített (szárítás, homogenizálás) szilárd talajmintákból 1 g-ot mértem ki analitikai mérleggel minden vizsgálathoz. A kimért mennyiséghez automata pipettával tracers (nyomjelzőt, ^{209}Po) adtam 1 ml-t. A ^{210}Po aktivitásának meghatározásához szükséges a nyomjelző, mivel azonos kémiai tulajdonsággal rendelkezik, mint a detektálandó izotóp, így a különböző feltárási és elválasztási folyamatokban is azonos hatásfokkal vesz részt, a folyamatok hatásfoka így nyomonkövethető.

A felhasznált ^{209}Po nyomjelző adatai (2M HCl oldatban):

- gyártás dátuma: 2023.08.21.
- aktivitáskoncentrációja a törzsoldat gyártásakor: 64,449 mBq/g
- felezési ideje: 103 év



14. ábra: ^{209}Po tracer

3.1.1.3.1 Feltérési módszerek vizsgálata

A feltérás célja a szerves anyagok elroncsolása és a szilárd talajminta oldatba vitele. Háromféle savas feltérési módszer alkalmaztam a jelen kutatás során, melyből a kutatás végén kiválasztásra kerül a legjobb, mely a legnagyobb hozamot eredményezi.



15. ábra: Feltérás

1. Talajminták kombinált savas feltérása

A kombinált savas feltérás során a mintában lévő szerves anyagot elroncsoltam 25 ml 65%-os HNO_3 -al, majd az oldat nagy részét bepároltam úgy, hogy kb. 5ml oldat maradjon. Ezt a lépést háromszor megismételtem. Következő lépésként 25 ml 37%-os HCl -el végeztem el a bepárlást háromszor megismételve úgy, hogy a bepárlások előtt 2-3 csepp 30%-os H_2O_2 -t adtam a mintához, hogy biztosan megszabadítsam az esetlegesen az oldatban maradt szervesanyagtól. A feltérás záró lépéseként a bepárlás ultra tiszta ionmentes víz hozzá adásával történt, amit az előző lépésekhez hasonlóan háromszor végeztem el. Ez a lépés a minta savasságának csökkentése érdekében történt. A feltérás során kb. 80 °C-on tartottam az oldatokat,

melyet a főzőlapon beállítottam és folyamatosan ellenőriztem. A művelet befejezését követően, a feltárt minták további feldolgozásra kerülnek [19].

2. Királyvizes nedves savas feltárás

Első lépésként a talajmintákból kimértem 1 g-ot és hozzá mértem még 30 mg Pb-hordozót (Pb-acetátot) és ezt követően a mintához hozzá tettem a tracert (^{209}Po). A feltárás során 5 ml 65%-os HNO_3 -mat és 15 ml 37%-os HCl -t egyszerre adtam a mintához, majd bepároltam. A bepárlást nem kell elvinni tömegállandóságig, azaz a rendszerben kb. 5 ml oldatot hagytam. Ezt a lépést háromszor végeztem el [20].

3. Összetett feltárás

A savas feltárást követően beállítottam a pH-t 3,5-re salétromsavval. Az oldathoz Fe^{3+} -t és ismert mennyiségű belső jelzőanyagot adtam a kémiai hozam értékeléséhez. NH_4OH -t tettem az oldathoz ezzel a pH-ját 8,5-re emeltem és így a $\text{Fe}(\text{OH})_3$ teljesen kicsapódott és ezzel együtt az aktinoidák és a polónium, az ólom is csapadékként kiválik az oldatból. A rádium és más elemek az oldatban maradtak. Az oldatot centrifugálással szétválasztottam és a felülúszót eldobtam. A csapadékot szárazra pároltam és 10 ml 37%-os HCl -ben feloldottam, majd háromszor megismételtem, hogy minden nitrátot kiűzzek a rendszerből, az utolsó szárazra párlás után 10 ml 2M HCl -ben oldottam fel.

3.1.1.3.2 Izotópelválasztási módszerek

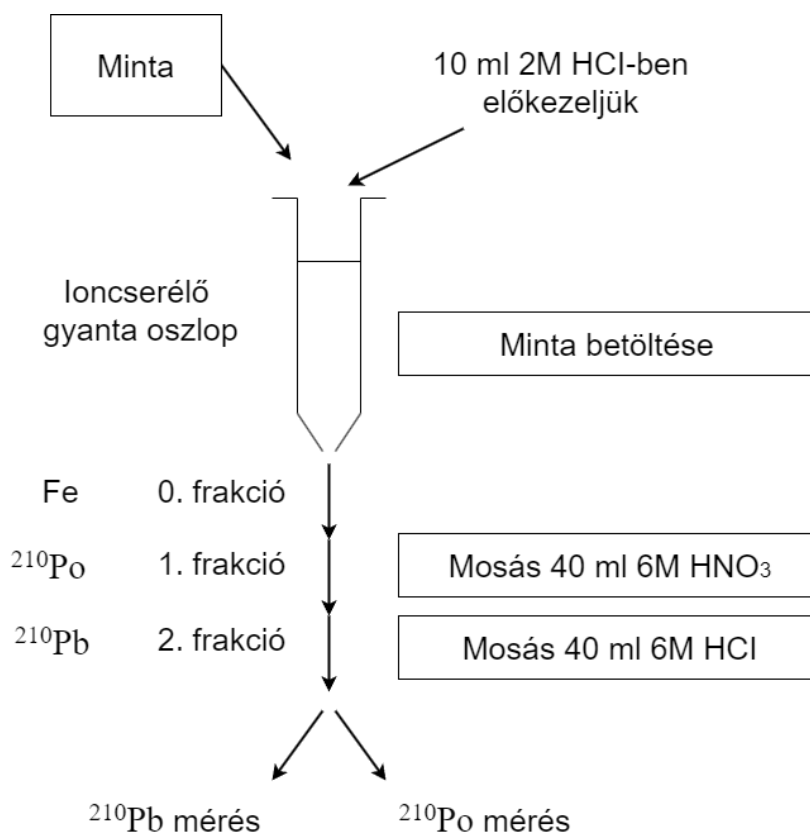
Az izotópok elválasztása azért szükséges lépés az eljárás során, mert az alfa-sugárzó polóniumot és a béta sugárzó ólmot el kívánjuk választani, valamint az önabszorpció és a mérési hatásfok javítása érdekében az egyéb zavaró ionok jelenlétét ki kell küszöbölni. A hagyományosan alkalmazott módszer esetében a minták feltárását követően spontán depozíciós módszerrel választjuk le a ^{210}Po izotópot, a forrást félvezető (PIPS) detektoros alfa-spektrometriai módszerrel mérjük, majd a törzsoldatot egy évre jól zárható edényben félretesszük. A ^{210}Pb aktivitáskoncentrációját a két izotóp közötti egyensúly beállása után határozzuk meg: a félretett oldatból spontán depozíciós eljárással választjuk le a ^{210}Po izotópot és az így kapott eredményből számoljuk a ^{210}Pb izotóp aktivitáskoncentrációját. Tehát a két izotóp meghatározásához egy év szükséges. Munkám során két különböző módszer alkalmazhatóságát vizsgáltam, melyek esetében a két izotóp szelektív elválasztásával viszonylag rövid idő alatt meghatározhatjuk azok koncentrációját. Mindkét módszer alapja az ioncserélő gyanta oszlopon történő elválasztás, mely elválasztást követően a ^{210}Po aktivitáskoncentrációját spontán depozíciós forráskészítést követően félvezető (PIPS) detektoros alfa-spektrometriai módszerrel, a ^{210}Pb

izotóp aktivitáskoncentrációját pedig folyadékszintillációs spektrometriai módszerrel határozzuk meg.

3.1.1.3.2.1 Folyadékminták ^{210}Pb és ^{210}Po meghatározása LSC-vel (1. módszer)

Első lépésben oldatba kell vinni a földmintákat a már korábban bemutatott összetett módszerrel. Ezt követően az oldatot egy ioncserélő gyanta oszlop segítségével választottam el különböző frakciókra. A művelet első lépéseként az oszlopot 10 ml 2M HCl-el mostam, majd az oldatot átengedtem az oszlopon és felfogtam a 0. frakciót, ami a vasat tartalmazza. Erre a frakcióra a későbbiekben már nem lesz szükség. A két cél izotóp még az ioncserélő gyantán van annak érdekében, hogy két külön frakcióba eltávolíthassam az oszlopról. Először 40 ml 6M HNO_3 -mal mostam a gyantát, így lejött 1. frakcióként a ^{210}Po . A 2. frakcióként ^{210}Pb -et választottam le az oszlopról úgy, hogy 40 ml 6M HCl-el mostam a gyantát. Az utolsó lépésben a gyanta tisztításának érdekében 40 ml 6M HNO_3 -mal, 40 ml 6M HCl-el és 10 ml 2M HCl-el átmostam majd 2M HCl-el konzerváltam az oszlopot.

A folyamat menete a 16. ábrán látható.



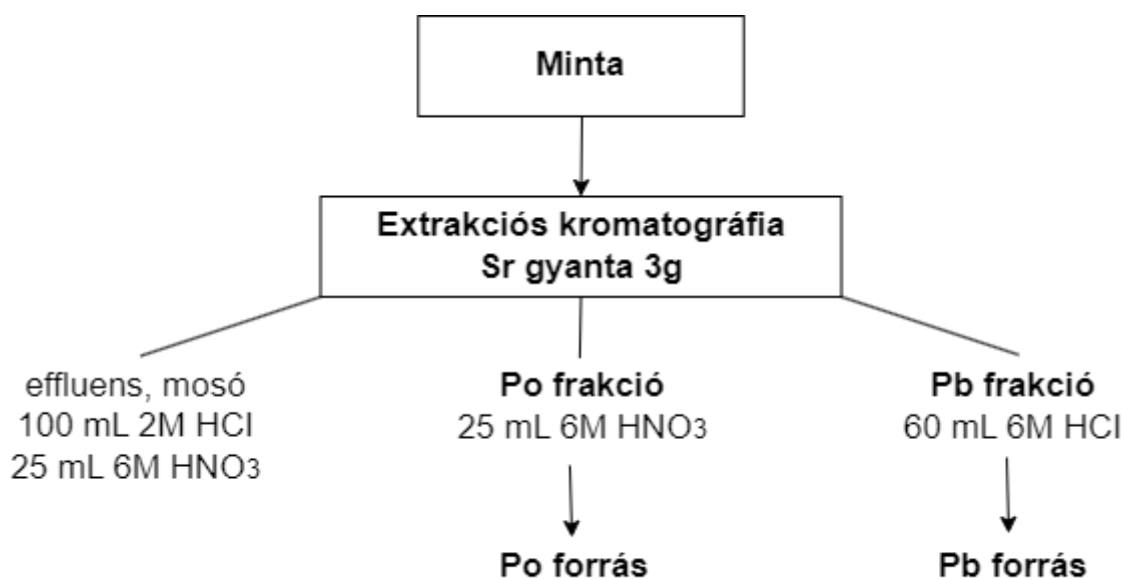
16. ábra: Radiokémiai eljárás sémája [21]

A frakciókból forrásokat kell készíteni a méréshez [22]. Az első fázist spontán depozíciós forrás készítésével vittem tovább, melyen alfa-spektrometriai mérést végeztem. A második frakcióként lejött oldatot előkészítések után, gravimetriás módszerrel visszamérem a leválasztott csapadék tömegét, amit bekevertem a szcintillációs folyadékba, így a minta már készen állt az LSC méréshez.

A fentiekben leírt izotópelválasztási eljárásra és a hozzá tartozó összetett feltárására későbbiekben 1. módszerként, valamint a laboratóriumi mintákon oszloposként hivatkoztam. A részletes folyamatábrát a melléklet 58. ábrája tartalmazza.

3.1.1.3.2.2 ^{210}Pb és ^{210}Po elválasztása stronciumgyanta segítségével (2. és 3. módszer)

Az eljárás előtt a Sr-oszlopot 100 ml 2M HCl-el és 25 ml 6M HNO_3 -mal mostam át. Ezt követően a mintát felvittem az oszlopra, majd 25 ml 6M HNO_3 -mal lemostam az első ^{210}Po -os frakciót. A következő lépésben az oszlopon maradt ^{210}Pb -t tartalmazó második frakciót mostam le az oszlopról 60 ml 6M HCl-el. A folyamat a 17. ábrán látható.



17. ábra: Radiokémiai eljárás sémája [19]

A polónium és az ólom meghatározásához ezt követően ebben az esetben is forrást kellett készíteni. Az első fázist spontán depozíciós forrás készítésével vittem tovább, melyen alfa-spektrometriai mérést végeztem. A második frakcióként lejött oldatot előkészítések után, gravimetriás módszerrel visszamérem a leválasztott csapadék tömegét, amit bekevertem a szcintillációs folyadékba, így a minta már így készen állt az LSC méréshez [20] [23].

A fentiekben leírt izotópelválasztási eljárásra és a hozzá tartozó talajminták kombinált savas feltárására későbbiekben 2. módszerként, valamint a laboratóriumi mintákon VN1-ként

hivatkoztam, illetve a fentiekben leírt izotópelválasztási eljárásra és a hozzá tartozó királyvizes nedves savas feltárássra későbbiekben 3. módszerként, valamint a laboratóriumi mintákon VN2-ként hivatkoztam. A részletes folyamatábrát a melléklet 59. ábrája tartalmazza.

3.1.1.3.3 *Forráskészítés ^{210}Po meghatározásához*

A forrást spontán depozícióval készítettem, úgy, hogy a savas feltárásokkal előkészített mintákból a vizsgálatokhoz vékony mintát kellett készítenem. Az alfa-spektrometriai mérésnél a forrás készítése a legkritikusabb rész, mivel nagyon fontos, hogy vékony és egyenletes vastagságú forrás kerüljön előkészítésre, hogy az alfa-sugárzás önabszorpciója minél kisebb legyen. A ^{210}Po réteg leválasztása ezüst, nikkelt vagy magas nikkeltartalmú saválló acéllemezre történik, mely azon alapszik, hogy a gyenge sósavas oldatból a Po(IV) ionok a más ionok mellől redoxireakció során leválnak a pozitívabb elektródpotenciálú fémekre.



18. ábra: Alfa-forrás

A forrás elkészítéséhez a vízfürdő termosztátját $80\text{ }^{\circ}\text{C}$ -ra állítottam be, mivel $90\text{ }^{\circ}\text{C}$ felett a ^{210}Po elillan. Magas nikkeltartalmú saválló acéllemezről a védőfólia eltávolítása után a felületet alkohollal megtisztítottam, mivel a felületének fényesnek és homogénnek kell lennie. Ezt követően a lemezt befogtam a spontán depozíciós cellába és bemértem 50 ml -t a vizsgálandó oldatból, melyhez hozzá adtam egy spatulányi aszkorbinsavat, hogyha van még jelen Fe(III) ion azt redukálja, mert ez megakadályozhatja a Po(IV) kiválását. A depozíciós cellát a $80\text{ }^{\circ}\text{C}$ -os vízfürdőbe helyeztem és 3 óra n át keverőbabával kevertettem, miközben a fogyó vizet pótoltam. A leválasztás után a cellát kiürítettem és ionmentes vízzel átöblítettem, a saválló lemezt kiszedtem és azt is ionmentes vízzel leöblítettem, ezt követően szobahőmérsékleten meg kellett szárítani.



19. ábra: Spontán depozíció

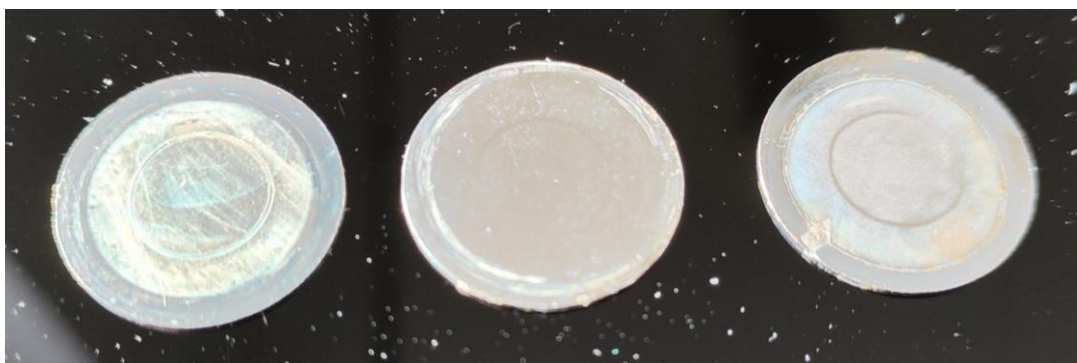
A fentiek mellett, a különböző mérési eljárásokhoz még szükséges volt a forráskészítéshez egyéb lépések elvégzése is.

Az 1. módszer ^{210}Po forrás készítésének speciális lépései:

A polóniumot tartalmazó frakciót szárazra kellett párolnom, majd 1 ml 37%-os HCl-el oldottam és ezt háromszor megismételtem. Az utolsó szárazra párlást követően 50 ml 1M HCl-ben oldottam fel a mintát, majd megszűrtem és ezt követően a szükséges mennyiséget bele töltöttem a spontán depozíciós cellába. Innentől a forrás készítés a fentiek alapján folytatódott.

A 2. és 3. módszer ^{210}Po forrás készítésének speciális lépései:

A polóniumot tartalmazó frakciót szárazra kellett párolnom, majd 100 ml 0,1M HCl-el oldottam, megszűrtem az oldatot és a szükséges mennyiséget bele töltöttem a spontán depozíciós cellába. Innentől a forrás készítés a fentiek alapján folytatódott [23].



20. ábra: Minták spontán depozíciós korongjai

A forráskészítés során az 1. módszer esetén teljesen jól kialakult a mononukleáris réteg az első korongon, míg a 2. módszer alkalmazása során pedig nem alakult ki mononukleáris réteg (2. korong), melyet a 20. ábra jól szemléltet. Ebből arra következtettem, hogy a spontán depozíció előtti savas oldás (100 ml 0,1M HCl) gyengének bizonyult és nem oldotta be a bepárolt csapadékot, ezért a további minták 2. módszerrel készült minta esetén már módosítottam az eljárást, amely során 50 ml 1M HCl-t használtam a visszaoldáshoz (3. korong). Itt szintén látszik, hogy megfelelően kivált a mononukleáris réteg.

A spontán depozíciót követően visszamaradt oldatot eltettem, hogy egy év múlva a szeku-láris egyensúly beállta után, ezekből a mintákból közvetett alfa-spektrometriai módszerrel meghatározhassam a ^{210}Pb aktivitáskoncentrációját, mely várakozásaim szerint összemérhető lesz a jelenlegi eredményekkel.

3.1.1.3.4 Forráskészítés ^{210}Pb meghatározásához

A különböző mérési eljárásokhoz más-más forráskészítési lépések tartoznak.

Az 1. módszer ^{210}Pb forrás készítésének speciális lépései:

Az ólmot tartalmazó frakciót szintén szárazra pároltam, a maradékból kb. 10 ml oldatot készítettem, úgy, hogy 0,6 ml 25%-os NH_3 -at és 7,4 ml vizet egyszerre adtam az oldathoz, ezt követően a mintába késhegynyi EDTA-t tettem, ezt az oldatot kellett összekevernem a szcintillációs koktéllal (10 ml).



21. ábra: Forrás előkészítés, bepárlási folyamat

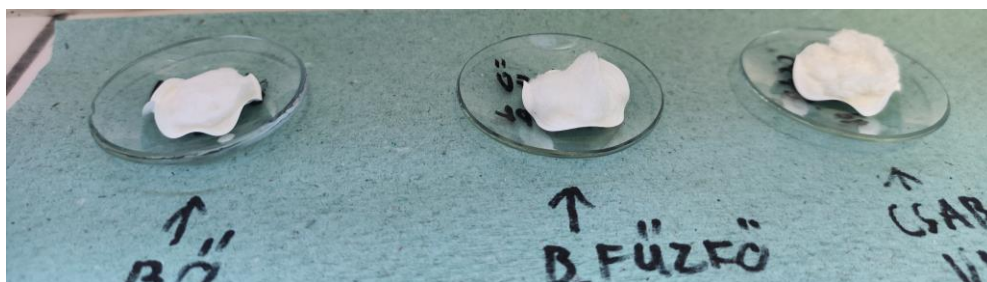
A 2. és 3. módszer ^{210}Pb forrás készítésének speciális lépései:

Az ólomot tartalmazó frakciós oldatot bepároltam, melyet 2 ml 65% HNO_3 -mal végeztem el és a lépést 3-szor megismételtem. Ehhez 400 mg oxálsavat kellett hozzá adni (559 mg két kristályvizet tartalmazó kristályos oxálsavat adtam a mintához), melyet követően 20 ml 1M HNO_3 -at adtam még hozzá. Majd a pH-t be kellett állítani, amit 4 ml ammónia oldattal végeztem, lehűtöttem és így megkaptam az ólom-oxalát csapadékot.



22. ábra: Ólom-oxalát csapadék kiválása

Ezt a csapadékot leszűrtem (3 x 2 ml desztillált vízzel és 1 x 2 ml alkohollal átmostam). Az ólom-oxalát csapadék tömegének meghatározásához, mindezek előtt le kellett mérnem a szűrőpárnak a tömegét is.



23. ábra: Leszűrt ólom-oxalát csapadék

Szobahőmérsékleten megszárítottam és szűrőpapírral együtt elhelyeztem a szcintillációs mintatartóba, majd ezt 1 ml 6M HNO_3 -al beoldottam, melyet 15 ml szcintillációs koktéllal kevertem össze, folyamatos rázás közben [23].



24. ábra: Folyadékszcintillációs mintatartó

Szcintillációs koktélként minden esetben az ULTIMA GOLD AB-t alkalmaztam.



25. ábra: Szcintillációs koktél

3.2 Alkalmazott mérések és mérőműszerek

Az elkészült forrásokat a megfelelő, a laboratóriumban rendelkezésre álló eszközökkel mértem és ezen mért spektrumokból minőségi és mennyiségi meghatározásokat tettem.

A különböző vizsgálandó sugárzás energiái azért fontosak a mérés során, mivel a mérő műszereket úgy kell beállítani, hogy ezen tartományba bele essen a vizsgálni kívánt sugárzás energiája. Az intervallum nem lehet túl nagy sem, mert akkor alacsony lesz a felbontási szint.

3.2.1 Félvezető detektoros gamma-spektrometria

A mintaelőkészítés befejezése után a gamma-spektrometriai mérést az ORTEC HPGe félvezető detektorral végeztem el. A méréshez 80000 s mérési időt állítottam be. Az APTEC számítógépes szoftver segítségével értékelem ki a kapott gamma-spektrumot. A gamma-spektrumon az energiák ismeretében meghatározható a ^{226}Ra gamma sugárzó-leányelemeinek

a ^{214}Pb (295 keV és 351 keV) és a ^{214}Bi (609 keV és 1120 keV) aktivitása az alábbi képlet segítségével [10]:

$$A = \frac{\frac{N_{\text{minta}}}{t_{\text{minta}}} - \frac{N_{\text{háttér}}}{t_{\text{háttér}}}}{\eta \cdot k_{\gamma}} \quad (3.1)$$

ahol: A: aktivitás (Bq), $N_{\text{minta}} / N_{\text{háttér}}$: minta/háttér esetében kapott nettó beütésszám (beütés), $t_{\text{minta}} / t_{\text{háttér}}$: minta/háttér mérési ideje (sec), η : adott energia esetén kapott hatásfok (-), k_{γ} : gamma gyakoriság (-)

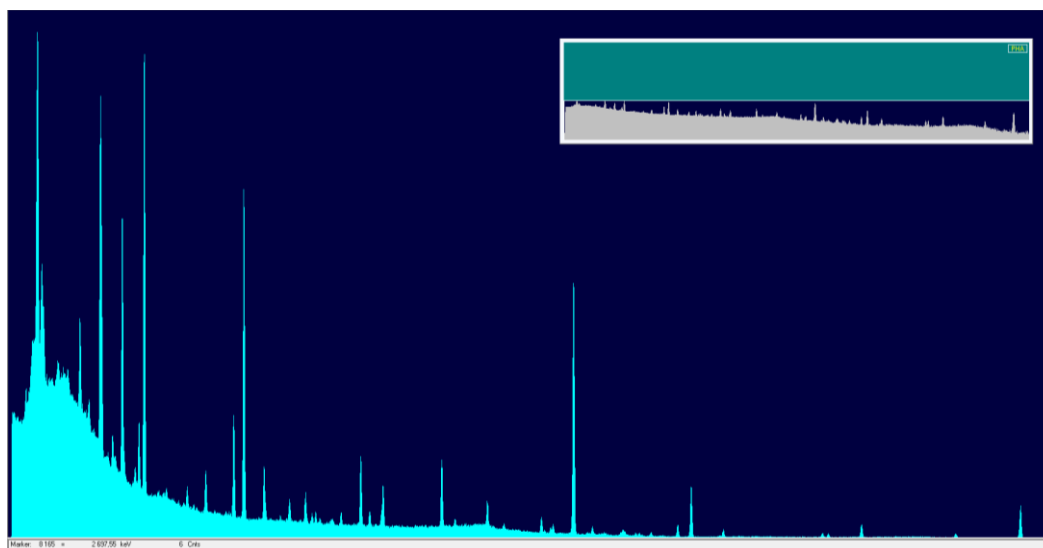
A beütés szám a csúcs alatti területtel azonos, a program a megadott izotópokat és a hozzájuk tartozó csúcsot kijelöli.

A ^{226}Ra aktivitása a leányelemeinek aktivitásából határozható meg, ezt a minta tömegével elosztottam és így megkaptam a minta rádiumra vonatkozó aktivitáskoncentrációját Bq/kg-ban.

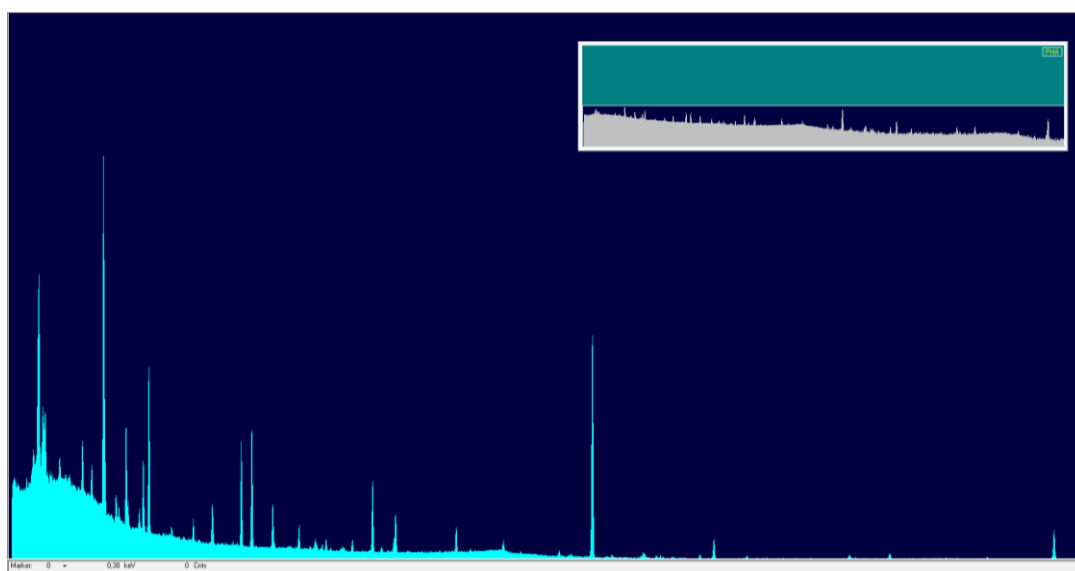
A mérés során a rádiumhoz hasonlóan a ^{232}Th aktivitáskoncentrációját is meg lehet határozni, bár ennek leányelemei ^{228}Ac (911 keV) és ^{208}Tl (583 keV és 2614 keV). A ^{40}K közvetlenül a spektrumról meghatározható volt, melynek energiája 1460 keV.



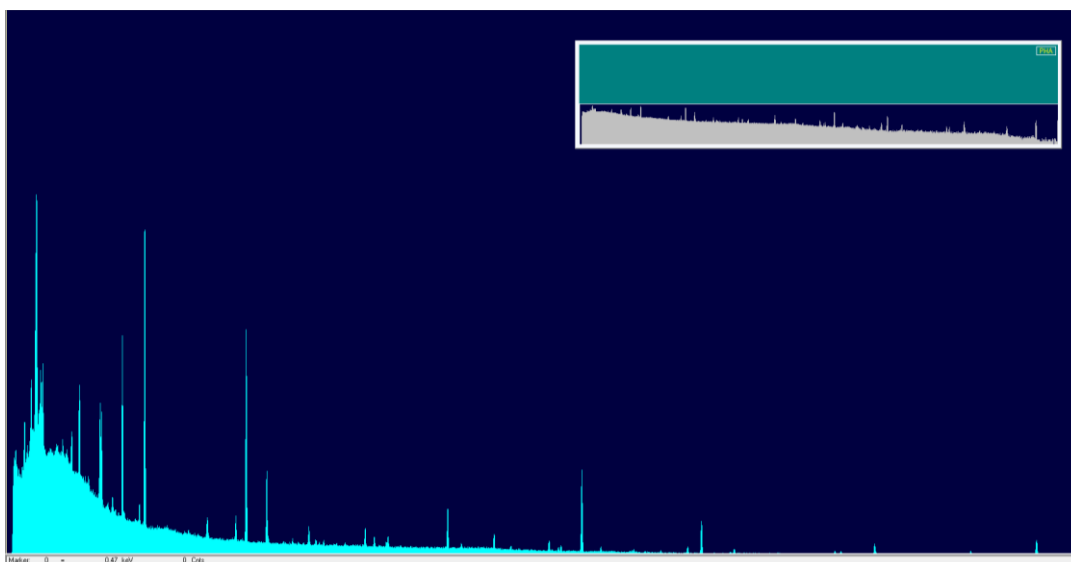
26. ábra: ORTEC HPGe félvezető detektor



27. ábra: Balatonfüzfő talajmintájának gamma-spektruma



28. ábra: Bő talajmintájának gamma-spektruma



29. ábra: Csabrendek talajmintájának gamma-spektruma

3.2.2 Fajlagos radonexhaláció és emanációs tényező meghatározása

A radonexhaláció és az emanációs tényező meghatározását akkumulációs módszerrel végeztem, a Tanszéken megépített mérőrendszerrel, melyben egy AlphaGUARD 2000 hordozható radon monitort alkalmaztam.



30. ábra: AlphaGuard 2000 hordozható radon monitor mérés közben

Az akkumulációs időt követően 3-4 nap múlva az összeállított mérőrendszer radonmonitorjáról felírtam a radon-koncentráció értékét, ami a háttérkoncentrációnak felel meg és a műszerben beállítottam a mérési időt 10 percre. Azért állítottam be 10 perces mérési időt, hogy a rendszerben a toron (felezési ideje 55,6 s) teljesen elbomolhasson. A méréshez rákapcsoltam a mintatartókat az áramforrásra és megnyitottam a csapokat, egy szivattyú segítségével a kamra

belső levegőjét egy nedvszívó közegen és egy légszűrőn át bejuttattam az AlphaGUARD 2000 monitor aktív térfogatába, mely egy impulzusionizációs kamra. Ezt követően felírtam a mérés pontos kezdő időpontját. Minimum 15 percig kell áramoltatni a levegőt, majd a szivattyút leállítom és elzártam a szelepeket, valamint leállítottam a kevertetést is. A műszert min. 40 percig működtettem és feljegyeztem a 10 percenkénti frissülő mérési eredményeket. Majd a mérés befejezését követően szétszedtem a mérőrendszert és átszellőztettem a radonmonitort N₂ gázzal [5].

Az exhalációs mérés előtt háttérmerést is elvégeztem, hogy a mérés pontos lehessen, valamint ehhez a fajlagos exhalációhoz fel kellett írni a betöltött minta tömegét is.

A minta fajlagos exhalációját E-t (mBq/kg/h) az alábbi képlettel számoltam [5]:

$$E = \frac{\Delta A}{K \cdot m \cdot t_{akk}} \cdot 1000 \quad (3.2)$$

ahol ΔA : ²²²Rn aktivitása a teljes mérőrendszerben (Bq), K: akkumulációs korrekciós faktor, m: a bemért minta tömege (kg), t_{akk} : akkumulációs idő (h)

Akkumulációs időtartam meghatározása és az akkumuláció során elbomló radon és a mért mennyiség közötti arány, a bomlaskorrekciós faktor meghatározása (K) az alábbi képlet segítségével történt [5]:

$$K = \frac{1 - e^{-\lambda \cdot t_{akk}}}{\lambda \cdot t_{akk}} \quad (3.3)$$

ahol λ : ²²²Rn bomlási állandó (1/h), t_{akk} : akkumulációs idő (h)

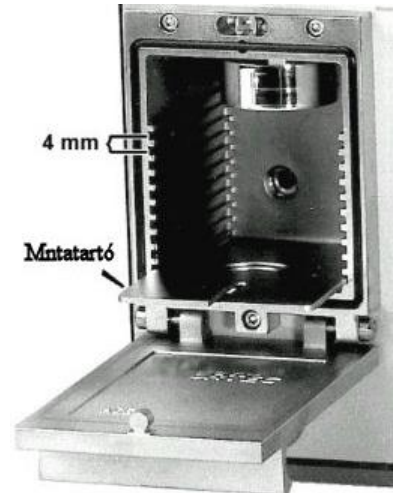
A radon emanációs tényezőjét a talajra vonatkozó rádium és radon aktivitáskoncentrációiból a következő képlet alapján határoztam meg [5]:

$$\varepsilon = \frac{A_{Rn-222}}{A_{Ra-226}} = \frac{E \cdot t_e \cdot K_e}{A_{Ra-226}} \quad (3.4)$$

ahol: A_{Rn-222} : a minta egyensúlyi ²²²Rn aktivitása (Bq), A_{Ra-226} : a minta ²²⁶Ra aktivitása (Bq), t_e : szekuláris egyensúly beállításához szükséges idő (h) (a ²²⁶Ra-²²²Rn esetében 27 nap), K_e : egyensúlyi helyzethez tartozó korrekciós faktor (jelen mérési paraméterekkel: 0,4)

3.2.3 Félvezető (PIPS) detektros alfa-spektrometria

A mérés során használt félvezetős PIPS típusú kétkamrás detektor típusa Ortec Alpha Duo, melynek energiafelbontása <20 keV [12], ha az érzékelő és a forrás közötti távolság megegyezik az érzékelő átmérőjével.



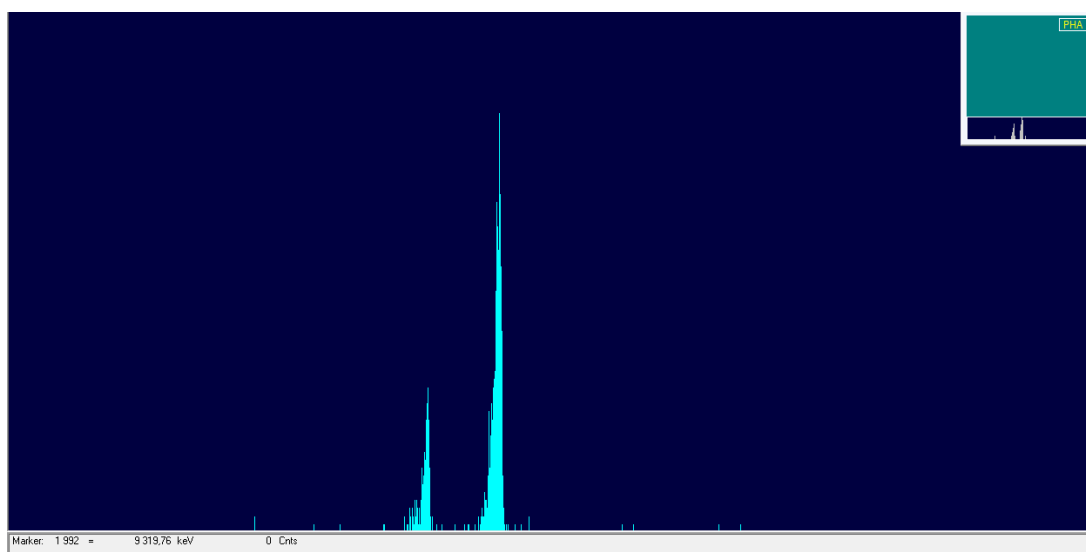
31. ábra: Kétkamrás Ortec Alpha Duo spektrométer, egy minta kamra [12]

Az asztali kompakt alfa-spektrométer két alfa spektroszkópiai csatornával rendelkezik. Minden egység számítógépes vákuummérést, változó detektor előfeszítést (kapcsolható pozitív vagy negatív), előerősítőt, változó amplitúdójú testimpulzus generátort és szivárgási áramfigyelőt tartalmaz. A két spektrométer mindegyike saját digitális eltolási és konverziós erősítéssel rendelkezik a maximális rugalmasság érdekében, mindegyik detektor egymástól függetlenül működik, 0 és 10 MeV közötti energiatartományban. Az Alpha Duo független MCA-kal (Multi Chanel Analyser) rendelkezik a feldolgozási idő optimalizálása érdekében. Az Alpha Duo-val szállított mintatálcák 19 mm és 25 mm minták vizsgálatát teszik lehetővé, az érzékelő és a minta közötti távolság 1-41 mm-ig állítható 4 mm-es lépésekkel, az érzékelő és a kamra alja közötti maximum távolság 44 mm. A detektor maximális mérete 1200 mm² [12].

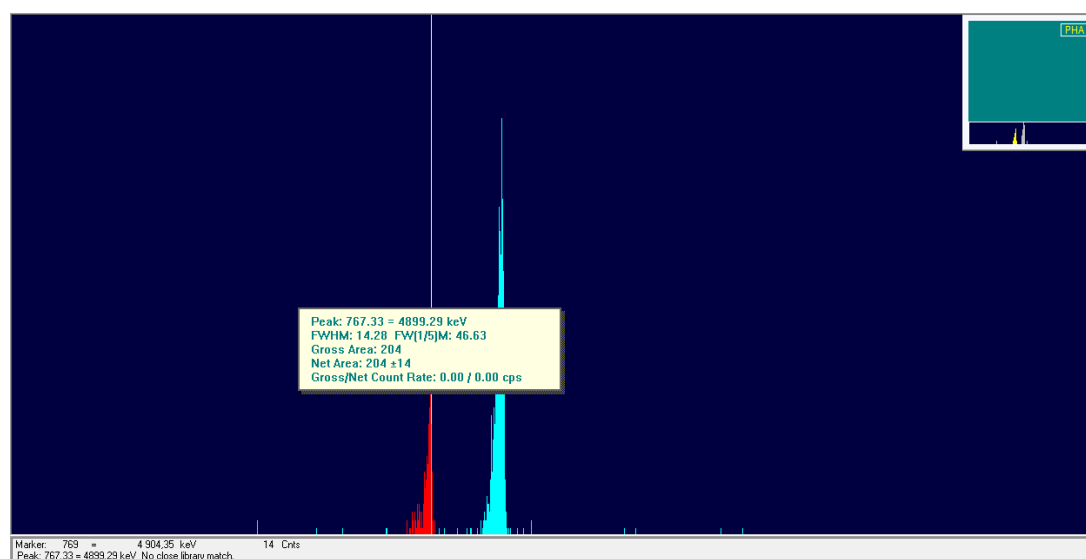
A vizsgálat során az acél korong felületére vékonyan felvitt radionuklid bomlásából származó alfa-részecskéket fogjuk detektálni vákuumban. Az alfa-sugárzás detektálásával a probléma, hogy az alfa-sugárzásnak kicsi a hatótávolsága, vagyis kicsi az áthatoló képessége, ebből következik, hogy ha vastag a leválasztott réteg nagy lesz az önabszorpciója, ami csökkenti a mérés hatékonyságát. A mononukleáris réteg leválasztása spontán depozícióval történik [24].

A mérés során mérési időnek a spontán depozíciót követően a korongon levált rétegtől függően 80000, 100000, 200000 s-ot állítottam be (minél szebb a leválasztás annál a rövidebb mérési idő is megfelelő eredményt hozhat). A kiértékelés során a spektrumon manuálisan kellett kijelölnöm az egyes izotópokhoz tartozó csúcsokat, ami a tracernél, azaz a ²⁰⁹Po-nél 4800 keV, míg a ²¹⁰Po-nál 5300 keV, a csúcs alatti terület a beütésszámmal egyenlő. A kiértékelés-

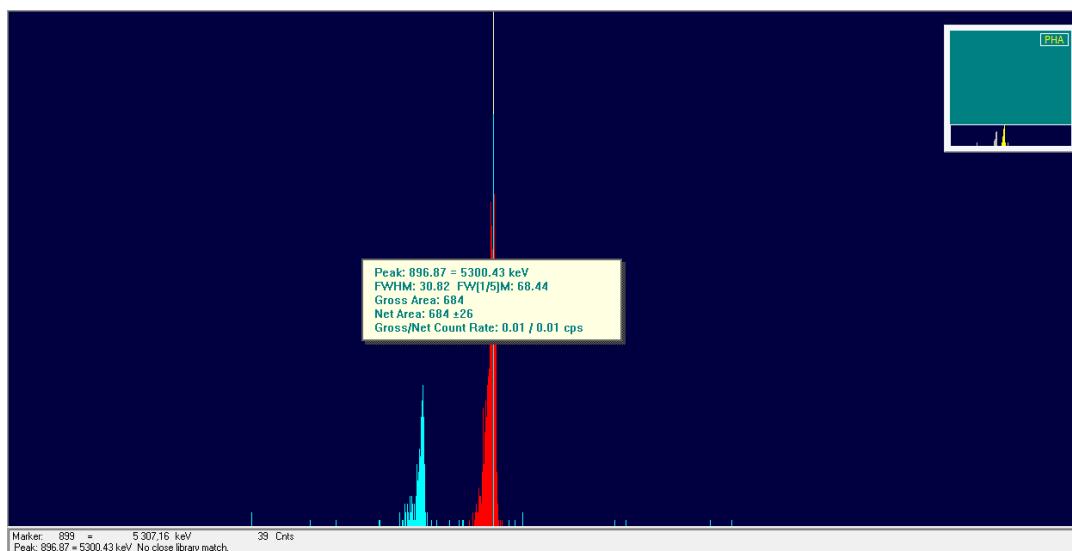
nél figyelembe kellett venni, hogy a mérés során az adott forrás melyik kamrába volt elhelyezve, mivel a két kamra esetén más-más háttér értéket mértem.



32. ábra: Bóli minta spektruma 1. módszerrel

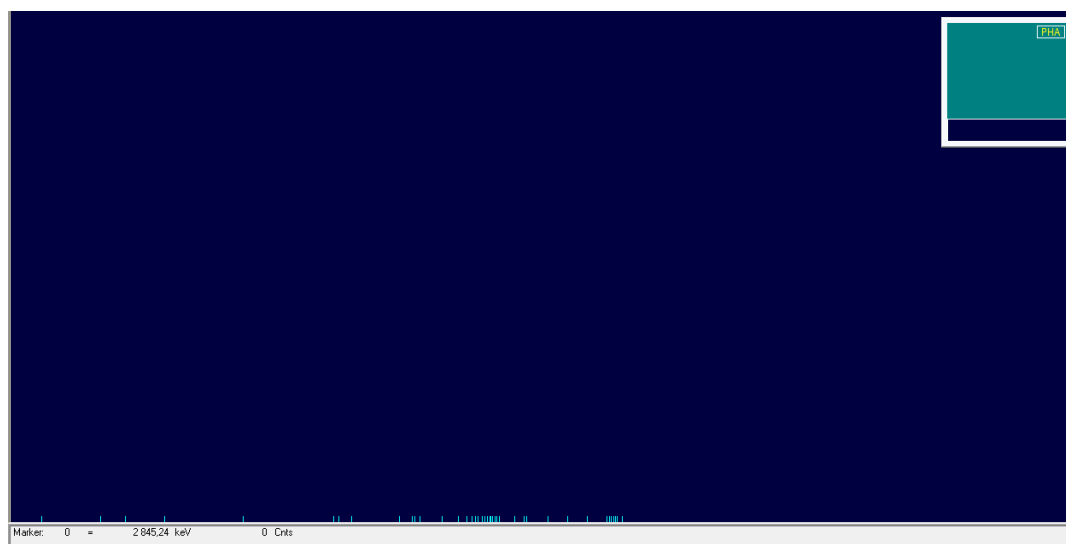


33. ábra: Bóli minta spektruma 1. módszerrel ^{209}Po tracer



34. ábra: Bói minta spektruma 1. módszerrel ^{210}Po

A királyvizes feltárásos 3. módszer nem hozta a várt eredményt, a spektrumon látható (35. ábra), hogy mérési határérték alatt van. Ez a módszer további kutatást igényel.



35. ábra: Bó minta spektruma királyvizes feltárásos 3. módszerrel ^{210}Po

A többi alfa-spektrumot a melléklet tartalmazza.

Az alfa spektrum kiértékeléshez az alábbi képleteket alkalmaztam [11]:

$$A_{210Po} = \frac{A_t \cdot N}{N_t} \quad (3.5)$$

ahol $A_{^{210}\text{Po}}$: a vizsgált ^{210}Po aktivitása (Bq), N : a vizsgált ^{210}Po csúcsának megfelelő terület (beütés), A_t : a nyomjelző ^{209}Po kezdeti aktivitása (Bq), N_t : a ^{209}Po nyomjelző csúcs alatti területe (beütés). A beütés számokat az adott energiához tartozó háttér értékkel korrigáltam.

Az aktivitás és a minta tömege alapján, meghatározható a ^{210}Po aktivitáskoncentrációja (Bq/kg):

$$c_A = \frac{A_{^{210}\text{Po}}}{m_{^{210}\text{Po}}} \quad (3.6)$$

ahol $A_{^{210}\text{Po}}$: a vizsgált ^{210}Po aktivitása (Bq), $m_{^{210}\text{Po}}$: vizsgált minta tömege (kg)

A másodpercenkénti beütésszám alkalmazásához a képletben el kellett osztanom a mérési idővel a detektorról leolvasott ^{209}Po és a ^{210}Po beütésszámokat.

A háttér beütésszámának meghatározásához, a két alfa kamrában üres mintatartóval és 200000 s-os mérési idővel elvégeztem a háttér mérést.

Meghatároztam a detektor hatásfokát (η) kalibráció segítségével, ahol a detektor hatásfoka 24,3%-os volt.

Ezt követően a kimutatási határt (KH) Bq/g-ban az alábbi képlet segítségével számoltam:

$$KH = \frac{2,71 + 4,65 \cdot \sqrt{I_h}}{\eta_d \cdot t \cdot M} \quad (3.7)$$

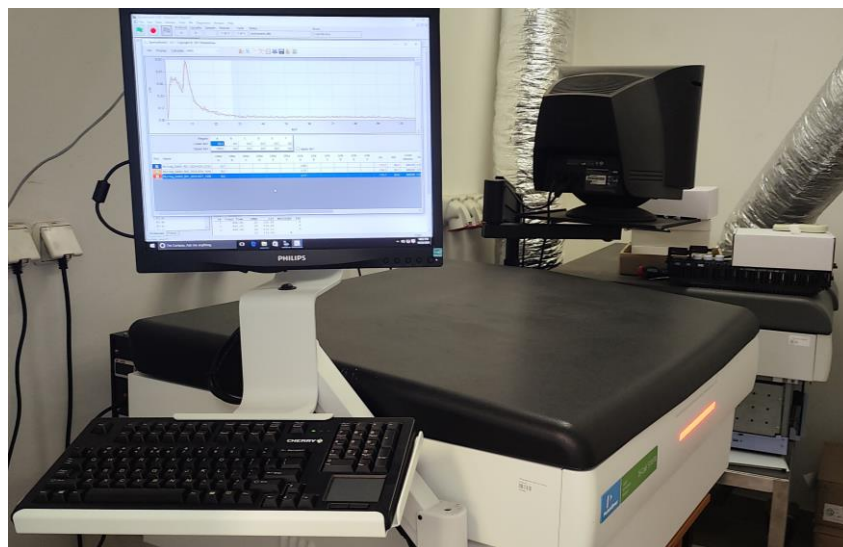
ahol I_h : háttér a vizsgálandó energiatartományban (impulzus), η_d : a detektor hatásfoka (%), t : mérési idő (s), M : felhasznált minta mennyisége (g)

A számításokat minden esetben Excel programmal végeztem. A mintából a mérés során mindig 1 g-ot mértem be +2% alatti hibával. Az 1. kamra KH értéke 1,091 mBq/g, míg a 2. kamráé 1,21 mBq/g volt.

3.2.4 LSC módszer

A mérés során a ^{210}Pb meghatározáshoz (béta-sugárzás mérésére) folyadékszintillációs detektort alkalmazunk, a Perkin Elmer Tri-Carb 3170TR/SL típusú berendezést, mely egy továbbfejlesztett LSC technológiát alkalmaz. Egy számítógép által vezérelt, asztali folyadékszintillációs analizátor, amelyet kifejezetten a rendkívül alacsony szintű alfa és béta radioaktivitások kimutatására konfiguráltak. A hagyományos folyadékszintillációs számlálás (LSC) koincidencia-számlálást használ a háttér események és a valódi szintillációs események megkülönböztetésére. Ez a technológia kiküszöböli az elektronikus zaj miatti háttérszámlálások nagy részét, nem szünteti meg teljesen. A PerkinElmer Tri-Carb LSA a koincidencia-számlálás és egy szabadalmaztatott az időfelbontású technológia folyadékszintillációs (TR-

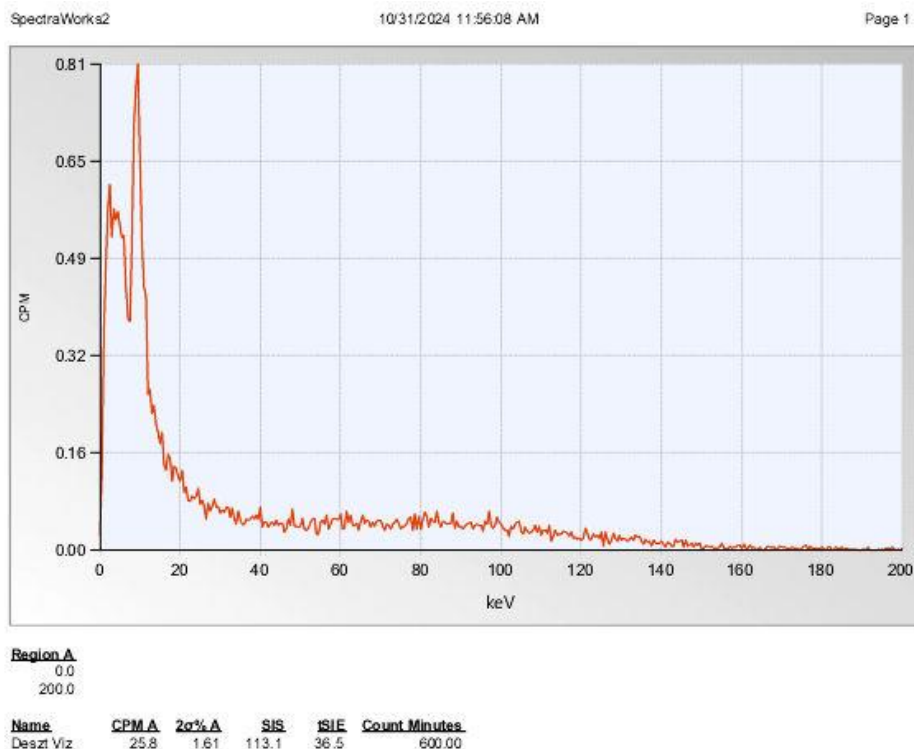
LSC) kombinációját használja, hogy megkülönböztesse a valódi bomlási eseményeket a háttértől. Az LSC érzékenysége a mintaszámlálás hatékonyságának és a háttérnek a függvénye. A nagyobb hatékonyság és az alacsonyabb háttér növeli a számlálási érzékenységet. A TR-LSC technológia akár 90%-kal csökkenti a háttérteret, ezáltal jelentősen megnöveli az összes LSC-alkalmazás érzékenységét [14].



36. ábra: PerkinElmer Tri-Barb 3170TR/SL LSC berendezés

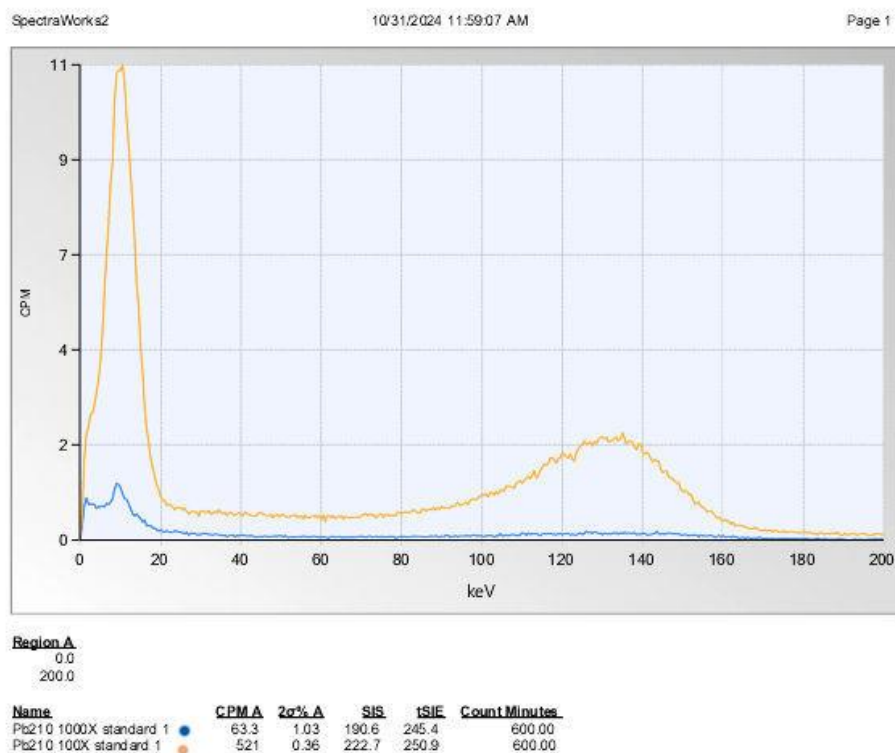
A szuper alacsony szintű számláló üzemmód (SLLCM) minden PerkinElmer 3170TR/SL modell alapfelszereltsége, és szabadalmaztatott bizmut-germánium-oxid (BGO) háttérérzékelő védőburkolatot alkalmaz, amely körülveszi a mintát, így több mint 90%-kal csökkenti a háttérteret a hagyományos berendezéshez (LSA) képest [14].

Az ólom mérést LSC mérő műszer segítségével végeztem úgy, hogy a szcintillációs koktéllal összekevert mintákat tartókba helyeztem és a minták után még egy desztillációs vizet tartalmazó tartót is behelyeztem, ami elengedhetetlen a méréshez, majd beállításra került az ólom méréshez szükséges protokollt az LSC-t vezérlő számítógépes programban. Protokoll tartalmazta a program beállításait specifikusan az izotópra 0-400 keV-ig. A mérési idő 600 perc mintánként, a készülék mintánként többszöri méréseket is végez. A mérést követően kiértékelhető a béta-spektrum [21].



37. ábra: LSC háttér spektruma

A háttér spektrumon a 0-20 keV között jelentkező nagy kiugrást a zaj hatása okozhatja.



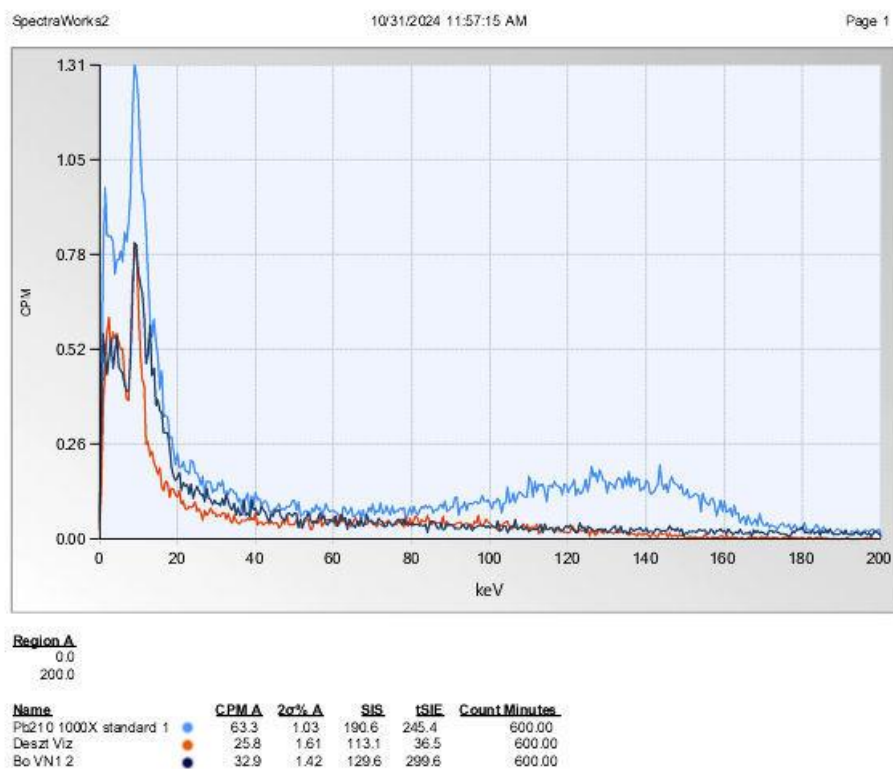
38. ábra: Standard 100x-os és 1000x-es hígítási spektruma

A méréshez készítettem kalibrációs oldatokat, melyekhez ^{210}Pb standardot használtam, aminek a tömege 1 g és 5003 Bq/g az aktivitáskoncentrációja.



39. ábra: ^{210}Pb standard

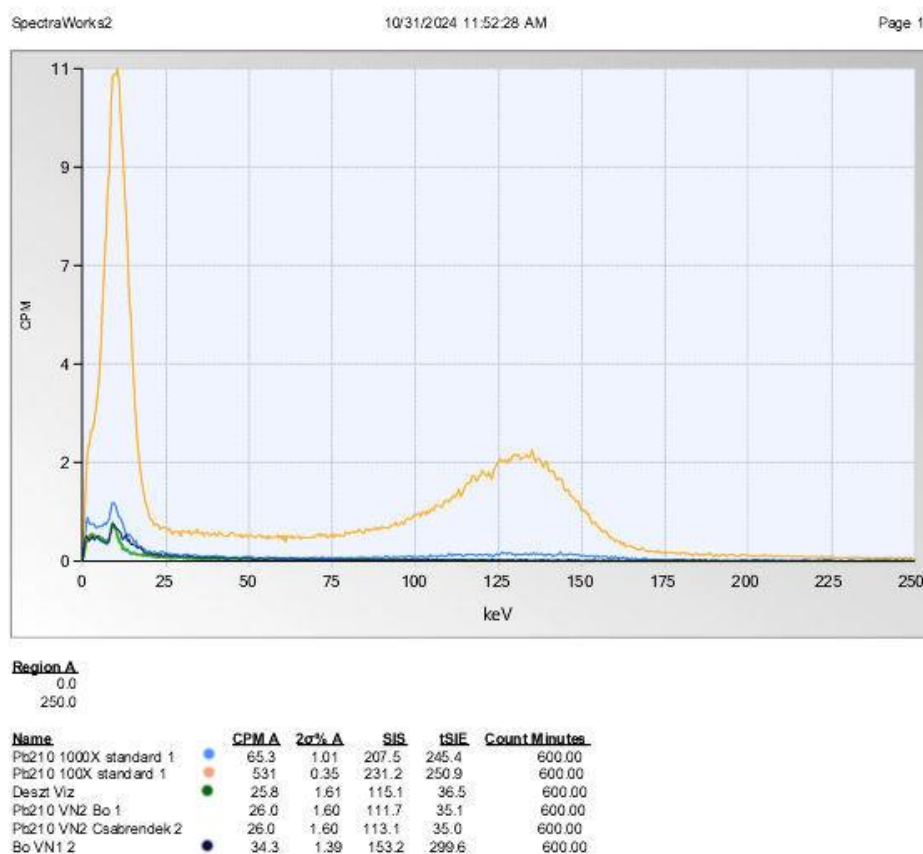
100x-os és 1000x-es hígítást végeztem az elkészített törzsoldatból, mivel a minták feltételezhetően alacsony aktivitáskoncentrációúak.



40. ábra: Bő talajmintájának 2. módszerrel béta-spektrum vizsgálata

15-16 keV-nál a standard és a minta csúcsai eltérnek a desztillált víz spektrumától, ebből látszik, hogy a megfelelő energiánál jön a ^{210}Pb .

A 41. ábra az összesített spektrumot tartalmazza, itt megfigyelhető, hogy az első nagy kiugrás azért lehet nagyobb minta a háttér spektrumán, mert a zaj mellett megjelenhet a quench (kémiai és szín kioltás) jelensége. A harmadik csúcs csak a két standard oldat spektrumán jelentős, így ebből és a csúcs lefutásának alakjából arra következtetnek, hogy ez a csúcs a ^{210}Pb bomlásterméke, a ^{210}Bi jelenléte miatt alakult ki.



41. ábra: Mérések béta-spektruma

Az aktivitáskoncnetráció meghatározásához relatív módszert alkalmaztam., mely során a mintából kapott ólom beütésszámot összehasonlítottam az ismert aktivitáskoncnetrációjú standard beütésszámával. A két standard közül úgy választottam ki az összehasonításhoz használt standardot, hogy minél közelebb essen a beütésszáma a minta beütésszámához a pontosabb eredmény érdekében.

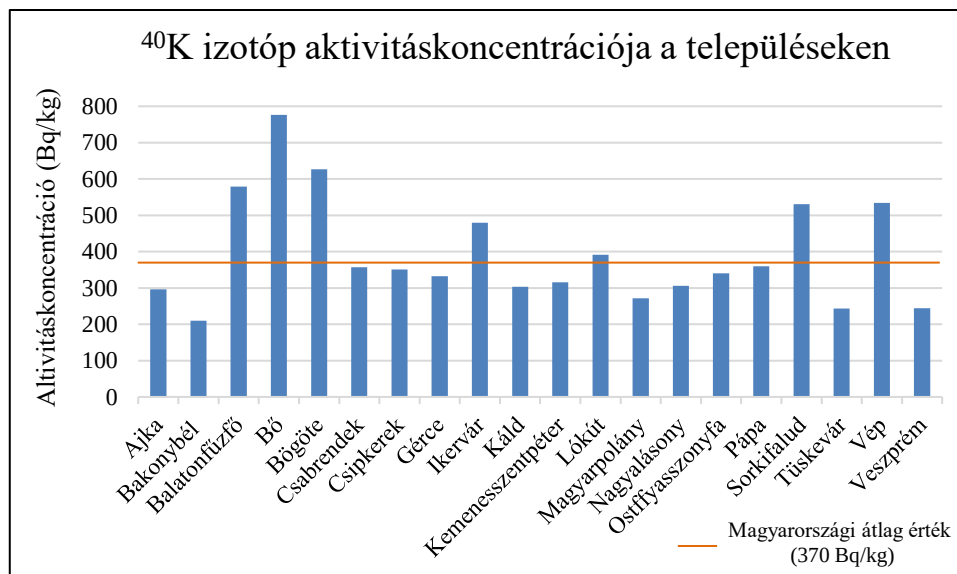
4 Eredmények, következtetések

4.1 Talajminták főbb gamma-sugárzó izotópjainak meghatározása

Gamma-spektrometriai elemzés során a szekuláris egyensúly beálltakor a bomlástermékek aktivitáskoncentrációjából meghatározható az anyaelem aktivitáskoncentrációja. A ^{214}Pb és a ^{214}Bi aktivitáskoncentrációjának átlagolásával határoztam meg a ^{226}Ra aktivitáskoncentrációját, míg a ^{228}Ac és a ^{208}Tl aktivitáskoncentrációjának átlagolásával pedig a ^{232}Th aktivitáskoncentrációját, a ^{40}K pedig közvetlenül meghatározható a saját gamma-sugárzásán keresztül.

2. táblázat: Laboratóriumi főbb gamma-sugárzók aktivitáskoncentrációi ^{40}K és ^{232}Th

Település	^{40}K (Bq/kg)			^{228}Ac (Bq/kg)			^{208}Tl (Bq/kg)			^{232}Th (Bq/kg)		
Ajka	295,8	±	0,3	26,6	±	1,3	20,4	±	0,7	22,5	±	0,9
Bakonybél	209,8	±	4,3	21,8	±	1	17,7	±	0,7	19	±	0,8
Balatonfűzfő	578,9	±	0,3	39,5	±	1,2	32,1	±	0,9	34,6	±	1
Bő	776,2	±	0,5	59,1	±	1,9	47,1	±	1,4	51,1	±	1,6
Bögöte	626,5	±	0,5	36,9	±	2	32,8	±	1,8	34,2	±	1,9
Csabrendek	356,9	±	1,2	21	±	3,5	18,3	±	2,9	19,2	±	3,1
Csipkerek	351,2	±	8,2	21,9	±	1,5	20,4	±	1,3	20,9	±	1,4
Gérce	332,3	±	12	28,5	±	2,5	25,4	±	2,2	26,4	±	2,3
Ikervár	479,8	±	0,7	28,2	±	2,4	24,7	±	2,1	25,9	±	2,2
Káld	303,3	±	0,2	18,3	±	1	15,2	±	0,7	16,2	±	0,8
Kemenesszentpéter	315,8	±	0,4	24,6	±	1,1	17,9	±	0,8	20,1	±	0,9
Lókút	391,1	±	0,2	42,3	±	2,6	35,6	±	2,1	37,8	±	2,3
Magyarpolány	271,1	±	0,5	17,7	±	2,1	15,8	±	1,6	16,4	±	1,8
Nagyalásony	305,6	±	5	19	±	0,8	15,9	±	0,7	16,9	±	0,7
Ostffyasszonyfa	340,5	±	9,6	21,8	±	1,9	17,4	±	1,6	18,8	±	1,7
Pápa	359,8	±	0,6	21,8	±	2,1	20,1	±	1,8	20,7	±	1,9
Sorkifalud	530,7	±	0,7	36,9	±	2,7	31,7	±	2,4	33,4	±	2,5
Tüskevár	242,9	±	0,3	18,1	±	1,1	13,8	±	0,8	15,2	±	0,9
Vép	533,9	±	0,4	44,2	±	1,4	36,1	±	1	38,8	±	1,2
Veszprém	244,4	±	4,9	23,5	±	1,1	19,2	±	0,76	20,6	±	0,87



42. ábra: ^{40}K aktivitáskoncentrációja a településeken



43. ábra: ^{232}Th aktivitáskoncentrációja a településeken

3. táblázat: Laboratóriumi főbb gamma-sugárzók aktivitáskoncentrációi ^{226}Ra

Település	^{214}Pb (Bq/kg)			^{214}Bi (Bq/kg)			^{226}Ra (Bq/kg)		
Ajka	28,6	±	0,8	28,8	±	1,2	28,7	±	1
Bakonybél	20	±	0,7	17,2	±	1,1	18,6	±	0,9
Balatonfűzfő	80,4	±	1,1	80	±	1,7	80,2	±	1,4
Bő	41,4	±	1,1	38,4	±	2,2	39,9	±	1,7
Bögöte	29,7	±	1,2	55,4	±	4,5	42,6	±	2,8
Csabrendek	127,2	±	3,1	117,1	±	5,6	122,2	±	4,4
Csipkerek	20,9	±	0,9	18,3	±	1,9	19,6	±	1,4
Gérce	65	±	1,7	59,5	±	3,5	62,3	±	2,6
Ikervár	26,5	±	1,4	22,5	±	3,1	24,5	±	2,2
Káld	15,2	±	0,7	13,7	±	1,2	14,4	±	0,9
Kemenesszentpéter	20,9	±	0,9	20,7	±	1,3	20,8	±	1,1
Lókút	50,3	±	1,8	47,3	±	3,3	48,8	±	2,5
Magyarpolány	21,2	±	1,3	18,4	±	2,5	19,8	±	1,9
Nagyalásony	16,3	±	0,6	15,4	±	1,2	15,9	±	0,9
Ostffyasszonyfa	22,2	±	1,1	18,1	±	2,5	20,1	±	1,8
Pápa	26,5	±	1,5	24,3	±	2,9	25,4	±	2,2
Sorkifalud	33,6	±	1,5	29,4	±	3,4	31,5	±	2,5
Tüskevár	59,5	±	1,1	58,6	±	1,6	59	±	1,4
Vép	39,9	±	1	35,4	±	1,7	37,6	±	1,3
Veszprém	25,5	±	0,8	22,5	±	1,3	24	±	1



44. ábra: ^{226}Ra aktivitáskoncentrációja a településeken

A mért területeken az egyes radionuklidok aktivitáskoncentrációit ábrázoltam a 42. ábra, 43. ábra és a 44. ábra alapján a Magyarországi átlaghoz képest. A Magyarországi átlaghoz

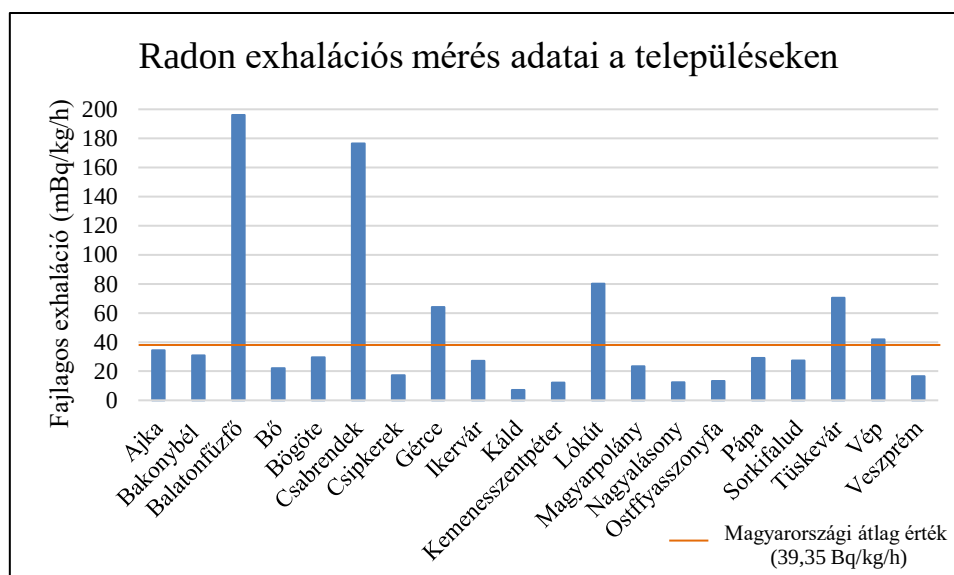
képest (370 Bq/kg [25]) a ^{40}K eltérő értékeket mutat, 209,8-776,2 Bq/kg közöttit (mérések átlag értéke 392 Bq/kg), mely a talajtípustól, a benne lévő ásványi anyagoktól függ. A vizsgált minták ^{226}Ra aktivitáskoncentrációja az átlag Magyarországi érték 33 Bq/kg [25] körül mozognak (mérések átlag értéke 37,8 Bq/kg), viszont egyes területeken kiugró értékeket mutatnak pl. Balatonfüzfő, Csabrendek. Ezen magasabb értékek származhatnak az ipari tevékenységekből, Balatonfüzfőn a nitrokémiai üzemtől, míg Csabrendeken a közelében a bauxit bányászatból, mely kb. 90 évig folyt. A ^{232}Th Magyarországi aktivitáskoncentrációjának átlagértéke 28 Bq/kg [25], mely átlagérték körülílik a mért értékek is (mérések átlag értéke 25,4 Bq/kg), viszont Bő településnél kiugró értéket mutat, ami nem az antropogén hatásnak köszönhető, hanem valószínűsíthetően a lejtőüledékes talaj miatti.

4.2 Talajminták radonexhalációjának értékei

A táblázat adatai azt mutatják, hogy a szemcséből a pórusterbe került radonatomok közül mennyi tud kilépni 1 kg mintából az atmoszférába óránként.

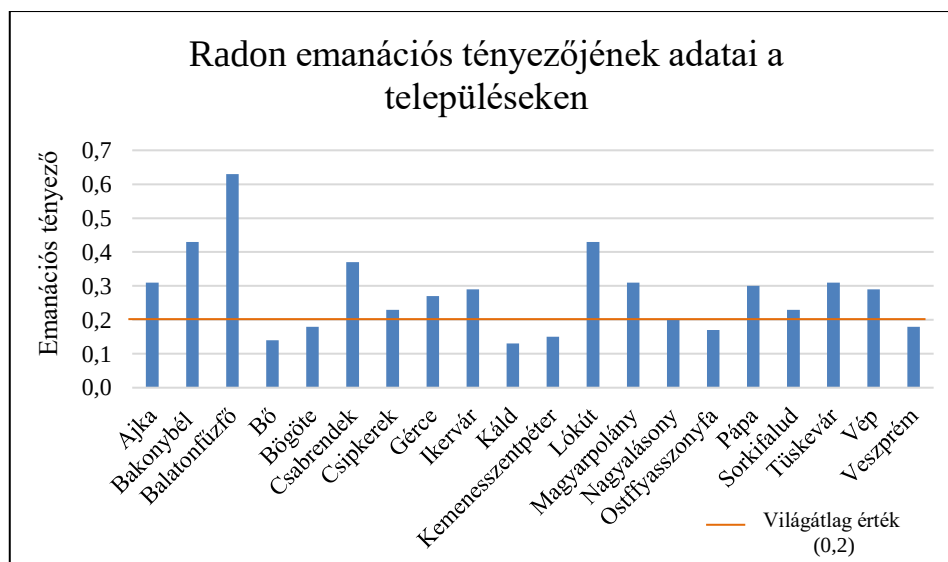
4. táblázat: Laboratóriumi radonexhalációs értékek

Település	Fajlagos exhaláció (mBq/kg/h)			Emanációs tényező		
Ajka	34,48	±	7,48	0,31	±	0,07
Bakonybél	30,79	±	4,68	0,43	±	0,07
Balatonfüzfő	196,00	±	4,00	0,63	±	0,01
Bő	22,13	±	8,69	0,14	±	0,06
Bögöte	29,50	±	3,74	0,18	±	0,02
Csabrendek	176,46	±	4,03	0,37	±	0,01
Csipkerek	17,22	±	6,24	0,23	±	0,08
Gérce	64,17	±	12,55	0,27	±	0,05
Ikervár	27,22	±	4,34	0,29	±	0,05
Káld	7,17	±	4,97	0,13	±	0,09
Kemenesszentpéter	12,21	±	5,91	0,15	±	0,07
Lókút	80,23	±	12,62	0,43	±	0,07
Magyarpolány	23,37	±	6,61	0,31	±	0,09
Nagyalásony	12,47	±	4,68	0,20	±	0,08
Ostffyasszonyfa	13,26	±	4,68	0,17	±	0,06
Pápa	29,10	±	3,54	0,30	±	0,04
Sorkifalud	27,45	±	3,56	0,23	±	0,03
Tüskevár	70,53	±	3,97	0,31	±	0,02
Vép	41,87	±	5,41	0,29	±	0,04
Veszprém	16,58	±	8,72	0,18	±	0,09



45. ábra: Radon fajlagos exhalációs értékei a településeken

A vizsgált talajminták fajlagos radonexhalációjának tartománya 7,17-196 mBq/kg/h közé esik, az átlag érték 46,61 mBq/kg/h. A Magyarországi átlagérték 39,35 Bq/kg/h, míg a világ-átlag 32 Bq/kg/h [26]. Látszik a 45. ábra alapján, hogy az átlag értéktől a vizsgált települések között kiugró értéket Balatonfüzfő és Csabrendek talajmintái mutatnak, ez valószínűsíthetően a települések ipari tevékenységeiből származnak.



46. ábra: Radon emanációs tényezőinek értékei a településeken

A talajminták emanációs tényezőinek tartománya a 46. ábra alapján 0,13-0,43 közötti értékeket mutatott, melyek átlagos érték 0,2775, mely a 0,2-es világtáblánál csak egy kicsit magasabb [26]. Kiugró értéket Bakonybél, Balatonfűzfő, Csabrendek és Lókút települések mutatnak, mely településeken a talajtípusok változatosak, így úgy tűnik nem függ a talajtípusoktól.

4.3 Talajminták ^{210}Po aktivitáskoncentrációjának meghatározása alfa-spektrometriai módszerrel

5. táblázat: Alfa-spektrometriai mérés hátttere

1. kamra (beütésszám)			2. kamra (beütésszám)		
16	±	4	21	±	4

6. táblázat: Minták beütésszáma 2/1

Település	1. módszer						2. módszer					
	^{209}Po (beütésszám)			^{210}Po (beütésszám)			^{209}Po (beütésszám)			^{210}Po (beütésszám)		
Balatonfűzfő (2. kamra)	49	±	7	211	±	14	599	±	27	660	±	30
Bő (1. kamra)	204	±	14	684	±	26	20	±	4	24	±	4
Csabrendek (1. kamra)	333	±	18	1271	±	39	728	±	70	838	±	64

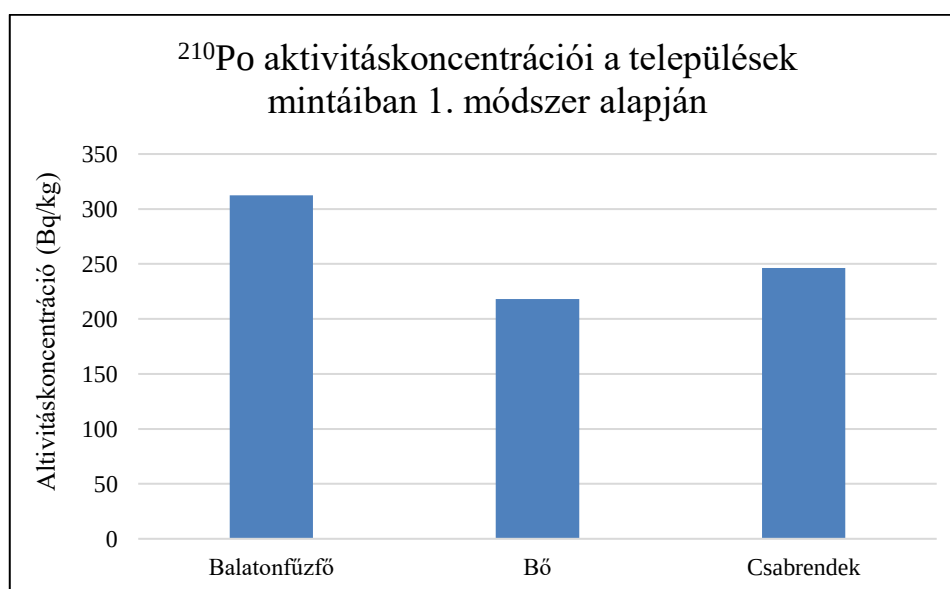
7. táblázat: Minták beütésszáma 2/2

Település	standard módszer					
	^{209}Po (beütésszám)			^{210}Po (beütésszám)		
Balatonfűzfő (2. kamra)	482	±	80	565	±	72
Bő (1. kamra)	439	±	20	520	±	22
Csabrendek (1. kamra)	430	±	20	544	±	29

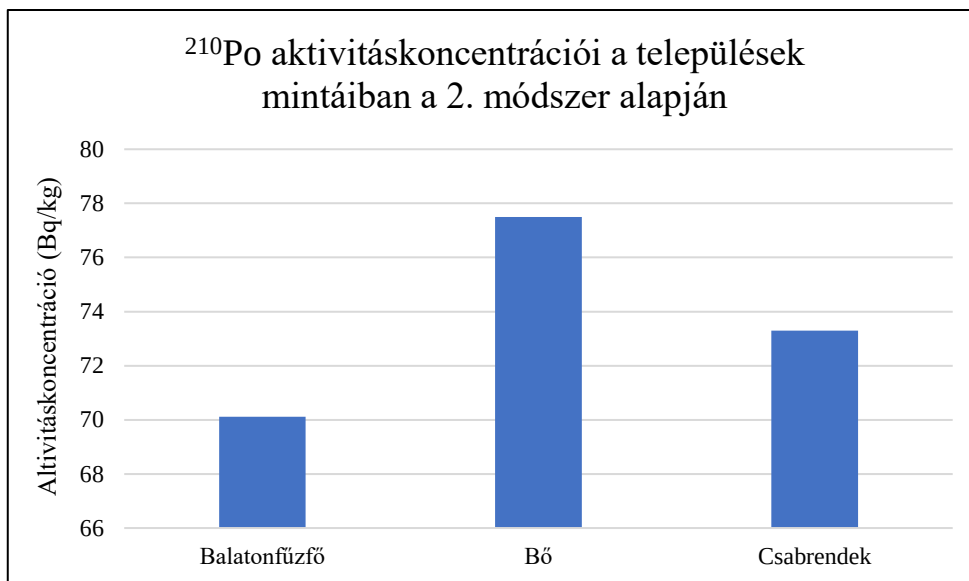
A standard módszerrel, melyet a Tanszék laborjában már rutinszerűen alkalmaznak, a talajmintákon kombinált savas feltárás végeztem és ezt követően vittem spontán depozícióra a mintákat. Ezen módszerhez tartozik a közvetett ólom mérés.

8. táblázat: Minták aktivitáskoncentrációi ^{210}Po -ra

	1. módszer	2. módszer	standard módszer
Település	^{210}Po (Bq/kg)	^{210}Po (Bq/kg)	^{210}Po (Bq/kg)
Balatonfüzfő	312,5	70,1	73,6
Bő	218,0	77,5	75,5
Csabrendek	246,4	73,3	80,7



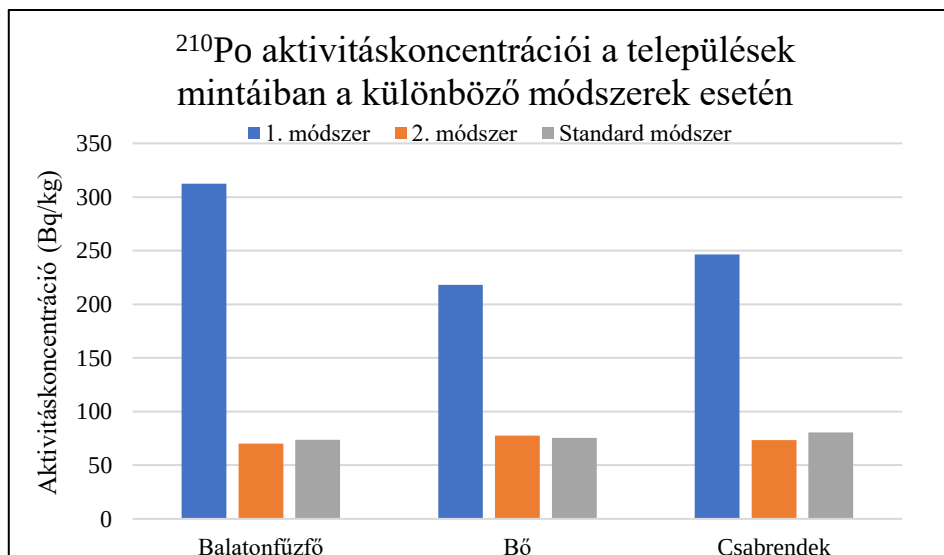
47. ábra: Kiválasztott települések talajmintáinak ^{210}Po aktivitáskoncentrációja 1. módszer alapján



48. ábra: Kiválasztott települések talajmintáinak ^{210}Po aktivitáskoncentrációja 2. módszer alapján



49. ábra: Kiválasztott települések talajmintáinak ^{210}Po aktivitáskoncentrációja standard módszer alapján



50. ábra: Kiválasztott települések talajmintáinak ^{210}Po aktivitáskonzentrációi különböző módszerekkel

A ^{210}Po világ átlaga nem ismert, viszont másik tanulmányhoz képest (ahol a talajmintákban a ^{210}Po aktivitáskonzentrációja 30 és 234 Bq/kg között mozgott [26]) tudom viszonyítani a kiválasztott talajmintáim átlagos aktivitáskonzentrációját. Az 1. módszer esetében a ^{210}Po aktivitáskonzentrációjának értékei a másik módszerekhez viszonyítva valószínűsíthetően az eljárásbeli különbségek miatt térhet el. Ennek a módszernek az alkalmazhatóságát további paraméteroptimalizálások mellett célszerű tovább vizsgálni.

4.4 Talajminták ^{210}Pb koncentrációjának meghatározása LSC segítségével

A kivált ólom-oxalátból gravimetriás hozamot számoltam, úgy, hogy a mintához az előkészítési lépésben hozzáadott és kimért ólom-acetát hordozó tömegét le kell vonni, mivel abból is származhat ólom. A szűrőpapír tömege minden esetben 25,4 mg volt.

9. táblázat: Leválasztott ólom csapadék gravimetriás mérés adatai

	Bemért ólom-acetát hordozó (mg)	Származott ólom tartalom (mg)	Mért csapadék szűrőpapírral (mg)	Ólom-oxalát csapadék tömege (mg)
Bő 2. módszer	34	21,66	122,47	97,07
Csabrendek 2. módszer	32	20,38	132,57	107,17
Balatonfüzfő 2. módszer	36	22,93	127,27	101,87
Bő 3. módszer	31	19,75	43,42	-
Csabrendek 3. módszer	33	21,02	40,99	-
Balatonfüzfő 3. módszer	35	22,29	40	-

Látható, hogy a királyvizes 3. módszer itt sem adott megfelelő eredményt az eddigi mérések alapján. Ez már a mérés közben látható volt, mivel nem keletkezett ólom-oxalát csapadék.

10. táblázat: ^{210}Pb mért beütésszámok

	Beütésszám (beütésszám)	Beütésszám (beütésszám)
Energia tartomány	13-19 keV	60-70 keV
Háttér (desztvíz)	2,1	0,9
Standard 100x	47,1	10,5
Standard 1000x	5,3	1,4
Bő 3. módszer	2,1	1
Csabrendek 3. módszer	2,2	0,9
Balatonfűzfő 3. módszer	2,1	0,9
Bő 2. módszer	4,3	1
Csabrendek 2. módszer	2,5	0,9
Balatonfűzfő 2. módszer	2,9	0,9
Bő 1. módszer	2,5	0,9
Csabrendek 1. módszer	4,3	1
Balatonfűzfő 1. módszer	4,2	1

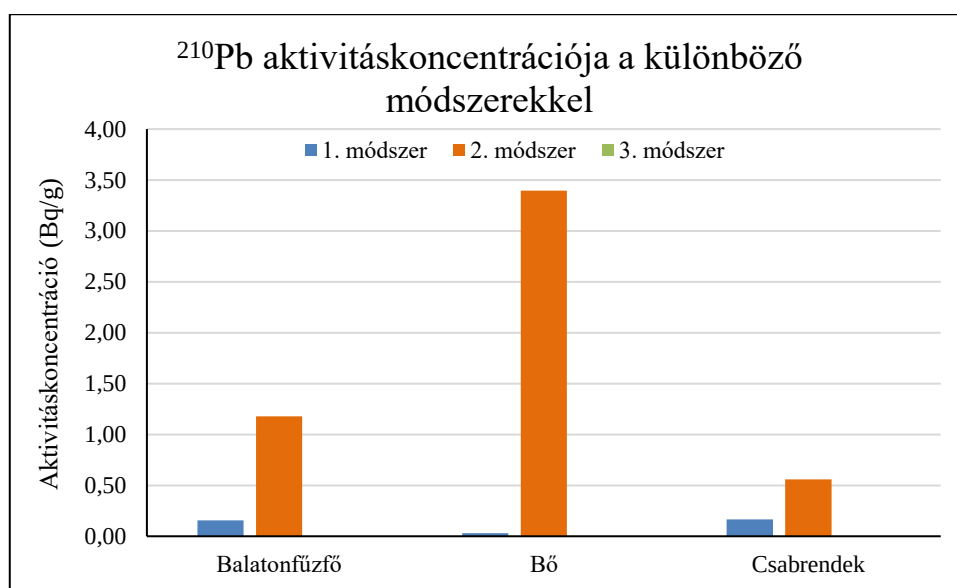
Az irodalmi adatok alapján két különböző gyakoriságú bomlása van a ^{210}Pb -nek, 80%-ban 15 keV, míg 61,5 keV energiánál 20%-os a béta-bomlási valószínűsége. A mérési adatokból látszik, hogy 60-70 keV között nem volt elkülöníthető a háttértől az ólom beütésszáma. Így ebben a tartományban nem számítható a jelenlegi mérések alapján a ^{210}Pb aktivitáskoncentrációja.

11. táblázat: ^{210}Pb kalibrációs oldatok aktivitáskoncentrációi

	Aktivitáskoncentráció (Bq/g)
Energia tartomány	13-19 keV
Standard 100x	0,48
Standard 1000x	0,05

12. táblázat: ^{210}Pb aktivitáskoncentrációja

	1. módszer	2. módszer	3. módszer
Balatonfűzfő	0,1573	1,1767	-
Bő	0,0300	3,3961	-
Csabrendek	0,1648	0,5593	-



51. ábra: ^{210}Pb aktivitáskoncentrációja különböző módszerekkel

A fentiek alapján, mivel a királyvizes feltárásból (3. módszer) nem keletkezett ólom-oxalát csapadék és a beütésszáma is csak minimálisan tér el a háttér beütésszámától, így a ^{210}Pb aktivitáskoncentrációja sem számolható. A csabrendeki talajminta aktivitása azért nem nulla a királyvizes feltárási módszernél (3. módszer), mert valószínűsíthetően a mérés időpontjában a háttér eltért az előzőekben mért értéktől.

Az 1. és 2. módszer méréseinek eredményei szintén különböznek, valószínűsíthetően az eljárásbeli különbségek miatt. A közvetett ólommérési módszer eredményével tudnám összehasonlítani a mérési eredményeimet és abból lenne eldönthető, hogy melyik kombinált módszer a legmegfelelőbb a gyorsabb ólom meghatározásához, viszont az összehasonlítás csak kb. 1 év múlva tehető meg.

5 Összefoglalás

A kutatási munkám során a célom a kiválasztott talajminták ^{210}Pb és ^{210}Po radioizotópok aktivitáskoncentrációjának meghatározása volt egy közös módszer kidolgozásával. A három talajminta kiválasztása, amin a ^{210}Pb és ^{210}Po izotópokra vonatkozó méréseimet végeztem az előzetes gamma-spektrometriai és radonexhalációs méréseimen alapszik.

A munkám során a Dunántúl északi részéről gyűjtött 20 db talajminta főbb gamma-sugárzó izotópjainak (^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K) aktivitáskoncentrációját vizsgáltam, valamint a települések radonexhalációjának és emanációs tényezőjének értékét. Ezeket a mért értékeket viszonyítottam a Magyarországi átlagértékekhez, mely során azt tapasztaltam, hogy a vizsgált talajminták eltérő értékeket mutattak, a ^{232}Th és ^{40}K aktivitáskoncentrációja esetében a talajtípustól, ásványi anyagtartalmától függtek az értékek, míg a ^{226}Ra esetében a területen folyó ipari tevékenységek nagyban befolyásolták a mért aktivitáskoncentrációkat.

A minták fajlagos radonexhalációját, és a radon emanációs tényezőjét, amelyek értéke szintén széles tartományba esik, amelyik mintánál magasabb volt a rádium aktivitáskoncentrációja ott a radonexhaláció és emanációs tényező értékei is magasabbak. A környezeti tényezők nagymértékben befolyásolhatják a radon atmoszférába jutását.

A 20 db minta eredményeinek átlaga, mind a főbb gamma-sugárzó radioizotópok, mind a fajlagos radonexhalációja és emanációs tényezője esetében magasabb volt, mint a Magyarországi átlag, kivéve a ^{232}Th -é, ami a mért talajminták esetében alacsonyabb átlagos értéket mutatott. Ez abból adódhatott, hogy több olyan településről került talajminta begyűjtésre, ahol ipari tevékenység folyt vagy folyik.

A 20 talajmintából az előző méréseket követően 3 talajminta Balatonfüzfő, Bő és Csabrendek mintái kerültek kiválasztásra a ^{210}Pb és ^{210}Po radioizotópok aktivitáskoncentrációjának meghatározásához. A 1. és a 2. módszerekből értékelhető eredmények születtek, viszont nagy eltérések vannak a módszerek aktivitáskoncentrációjának értékei között, így további módszerfejlesztés, kutatás szükséges egy megbízható kombinált eljárás kifejlesztéséhez.

Távlati céljaim, hogy az alkalmazott ioncserélő elválasztáson alapuló módszereket tovább vizsgáljam, validáljam, ezzel együtt a kiválasztott három település talajmintáiban a ^{210}Po és ^{210}Pb radioizotópokat mikrohullámú feltárást követően is megmérjem. Elvégzendő feladat még a polónium leválasztásából eltett minta ^{210}Pb tartalmának meghatározása alfa-spektrometriai közvetett módszerrel és az eredmények összehasonlítása az általam alkalmazott közvetlen ólom meghatározási módszerrel. Következő hosszútávú célom, hogy a közvet-

len ólommeghatározási módszert kiterjesszem egyéb környezeti mintákban található ^{210}Po és ^{210}Pb vizsgálatára is.

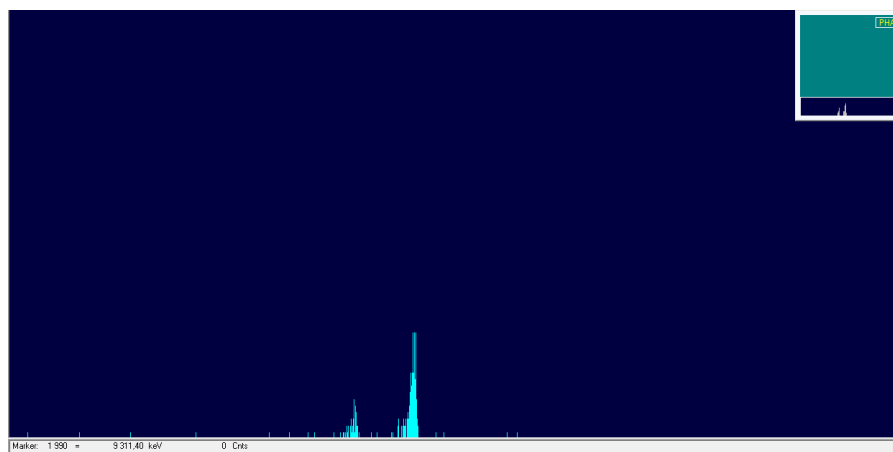
Mindezen célok elérését követően az új módszerrel a ^{210}Po és ^{210}Pb aktivitáskoncentrációi különböző környezeti elemekben viszonylag rövid idő alatt együttesen meghatározható lenne.

Irodalomjegyzék

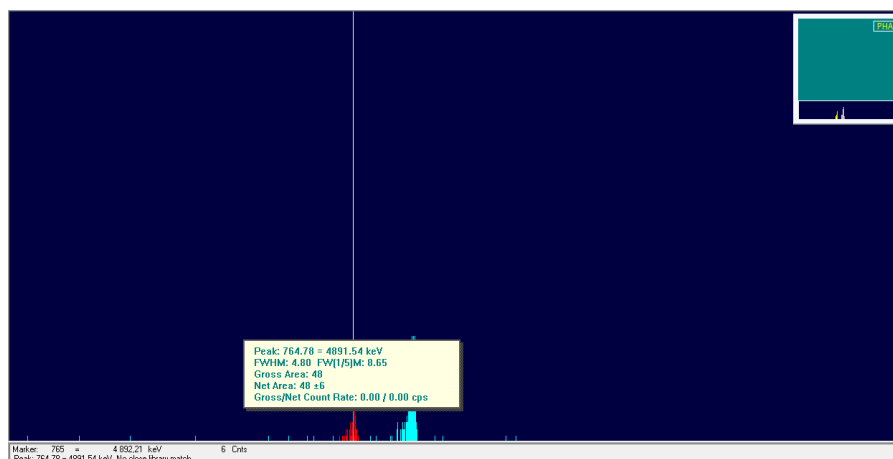
- [1] MVM Paksi Atomerőmű, „Sugáregészségügyi ismeretek”.
- [2] Nemzeti Népegészségügyi Központ, „A radioaktivitásról dióhéjban,” Budapest.
- [3] „10. Előadás :Urántermelés, felhasználás fizikája,” PTE Fizika Intézet, Pécs, 2011.
- [4] Természettudományos Tananyagok, „Radioaktivitás”.
- [5] Radiokémiai és Radioökológiai Laboratóriumi gyakorlat jegyzet, „Építőanyagok radiológiai minősítése (radonemanáció és –exhaláció, I-index meghatározása),” Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti tanszék, Veszprém, 2020.
- [6] Handong Yang & Peter G. Appleby , „Use of lead-210 as a novel tracer for lead (Pb) sources in plants,” *Scientific Reports* 6, 22 02 2016.
- [7] Mester András, Radnóti Katalin, „A polónium története,” *Nukleon*, %1. kötetV. évf., p. 104, 03 2012.
- [8] Bundesamt für Strahlenschutz, „BfS: Ionising radiation,” 28 06 2023. [Online]. Available: https://www.bfs.de/EN/topics/ion/effect/radioactive-materials/polonium/polonium_node.html. [Hozzáférés dátuma: 21 06 2024].
- [9] Massimo Alberto Franceschi, „Researchgate.net,” [Online]. Available: https://www.researchgate.net/figure/The-decay-chain-210-Pb-210-Bi-210-Po-206-Pb-Within-parentheses-the-half-lives-of_fig1_230904327. [Hozzáférés dátuma: 05 10 2024].
- [10] Radiokémiai és Radioökológiai Laboratóriumi gyakorlat jegyzet, „Gamma-spektrometriai vizsgálatok HPGe félvezető detektorral,” Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszék, Veszprém, 2020.
- [11] Radiokémiai és Radioökológiai Laboratóriumi gyakorlat jegyzet, „Félvezető detektoros alfa-spektrometria,” PE Radiokémiai és radioökológiai Intézeti tanszék, Veszprém, 2020.
- [12] „ORTEC: Alpha Duo, Alpha Mega and Alpha Ensemble Integrated Alpha Spectrometer Hardware Users Guide,” [Online]. Available: <https://www.ortec-online.com/-/media/ametektortec/manuals/a/alpha-duo-mega-ensemble-mnl.pdf>. [Hozzáférés dátuma: 30 09 2024].
- [13] Bódizs Dénes, „Atommagsugárzások mérés technikái,” Typotex kiadó, Budapest, 2006.
- [14] „Perkin Elmer Tri-Carb LSA Investigator Guide,” [Online]. Available: https://kalite.erdogan.edu.tr/Files/ckFiles/kalite-idari-erdogan-edu-tr/Perkin%20Elmer%20-%20S%20C4%B1v%C4%B1%20Sintilasyon%20Cihaz%C4%B1_Kullan%C4%B1m_K%C4%B1lavuzu.pdf. [Hozzáférés dátuma: 07 10 2024].
- [15] „Magyar Elektronikus Könyvtár: 6. HAZÁNKBAN TALÁLHATÓ TALAJTÍPUSOK,” [Online]. Available: <https://mek.oszk.hu/00100/00154/html/mtsz/zk/zk30.htm>. [Hozzáférés dátuma: 01 09 2024].

- [16] „NÉBIH: Magyarország talajtípusai,” [Online]. Available: <https://portal.nebih.gov.hu/-/magyarorszag-talajtipusai/>. [Hozzáférés dátuma: 28 08 2024].
- [17] „dent Tours,” [Online]. Available: <https://www.denttours.hu/oldalak/13:turisztikai-regiok-magyarorszagon.html>. [Hozzáférés dátuma: 04 09 2024].
- [18] Dr. BALLENEGGER RÓBERT és Dr. MADOS LÁSZLÓ, „Magyar Elektronikus Könyvtár: Talajvizsgálati Módszerkönyv,” 1944. [Online]. Available: <https://mek.oszk.hu/18400/18449/18449.pdf>. [Hozzáférés dátuma: 21 08 2024].
- [19] J. de la Torre Pérez a, M. Jurado Vargas a, A. Martín Sánchez a, M.P. Rubio Montero b, A.B. Ruano Sánchez, „ScienceDirect: Determination of alpha activity in solid samples by leaching or digestion,” 11 2013. [Online]. Available: <https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S0969804313001309>. [Hozzáférés dátuma: 25 06 2024].
- [20] Vajda Nóra, „ANALITIKAI MÓDSZEREK FEJLESZTÉSE NEHEZEN MÉRHETŐ RADIOIZOTÓPOK MEGHATÁROZÁSÁRA,” Budapest, 2014.
- [21] Villa-Alfageme, M., Mas, J. L., Hurtado-Bermudez, S., & Masqué, P., „Rapid determination of 210 Pb and 210 Po in water and application to marine samples,” *Talanta* 160, pp. 28-35, 2016.
- [22] Lozano, J.C., Tomé, F.V., Rodríguez, P.B., & Prieto, C., „A sequential method for the determination of 210Pb, 226Ra, and uranium and thorium radioisotopes by LSC and alpha-spectrometry,” *ELSEVIER Applied Radiation and Isotopes* 68 (4-5), %1. kötet *Applied Radiation and Isotopes* 68, p. 828–831, 2010.
- [23] N. Vajda, b, J. LaRosaa, R. Zeisler, P. Danesi and Gy. Kis-Benedek, „A Novel Technique for the Simultaneous Determination of 210Pb and 210Po Using a Crown Ether,” *J. Environ. Radioactivity*, 1997.
- [24] Dr. Somlai János, „Nukleáris mérési technológia környezetmérnököknek,” Pannon Egyetem – Környezetmérnöki Intézet, Veszprém, 2013.
- [25] „UNSCEAR: Sources and effects of ionizing radiation,” 2000. [Online]. Available: https://www.unscear.org/docs/publications/2000/UNSCEAR_2000_Report_Vol.I.pdf. [Hozzáférés dátuma: 24 10 2024].
- [26] Anita Csordás, Máté Novák, Edit Tóth-Bodrogi, Péter György, Máté Fehérvári & Ti-bor Kovács, „Assessment of anthropogenic impacts on the radioecological status of the Bakony region, Hungary,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 2023.
- [27] MILESTONE Microwave, „Soil Partial Digestion,” pp. DG-EN-13.
- [28] MILESTONE Microwave, „Soil,” pp. DG-EN-12.
- [29] Radiokémiai és Radioökológiai Laboratóriumi gyakorlat jegyzet, „Béta-sugárzó izotópok vizsgálata folyadékszintillációs méréstechnikával,” Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszék, Veszprém, 2020.

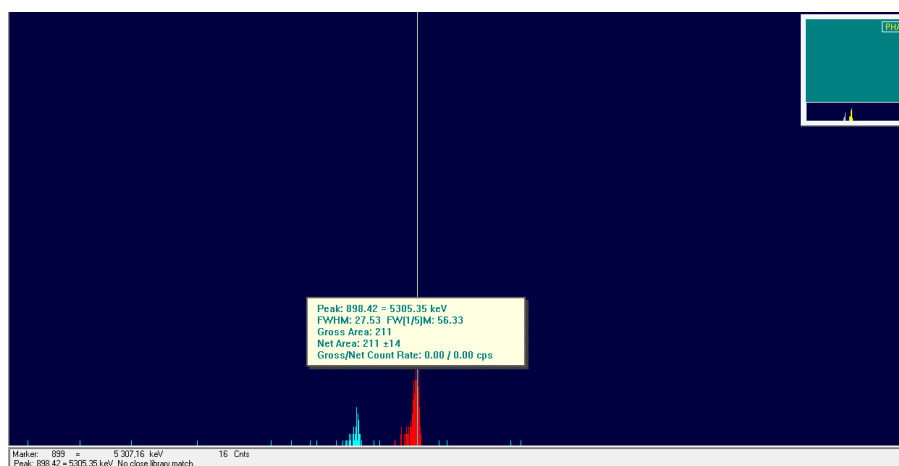
Mellékletek



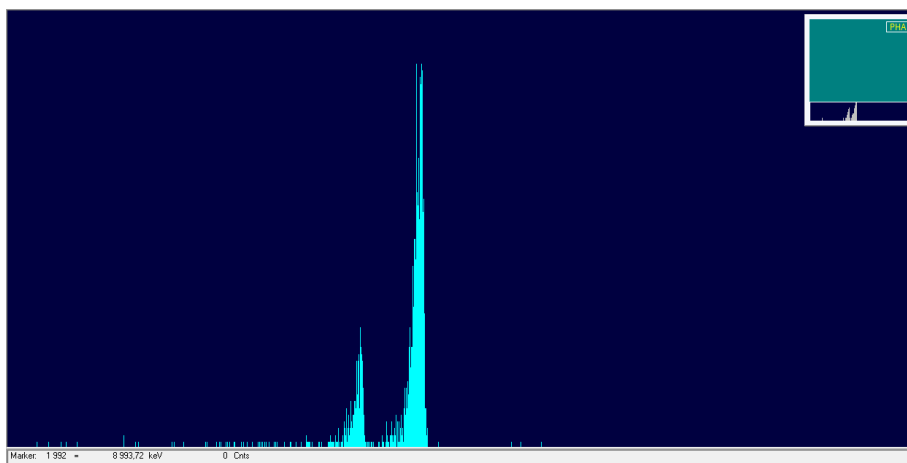
52. ábra: Balatonfüzfői minta spektruma 1. módszerrel



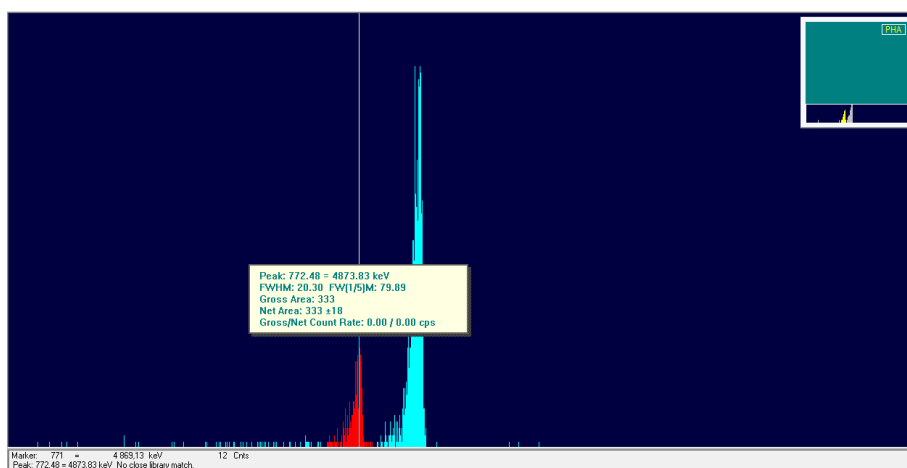
53. ábra: Balatonfüzfői minta spektruma 1. módszerrel ^{209}Po tracer



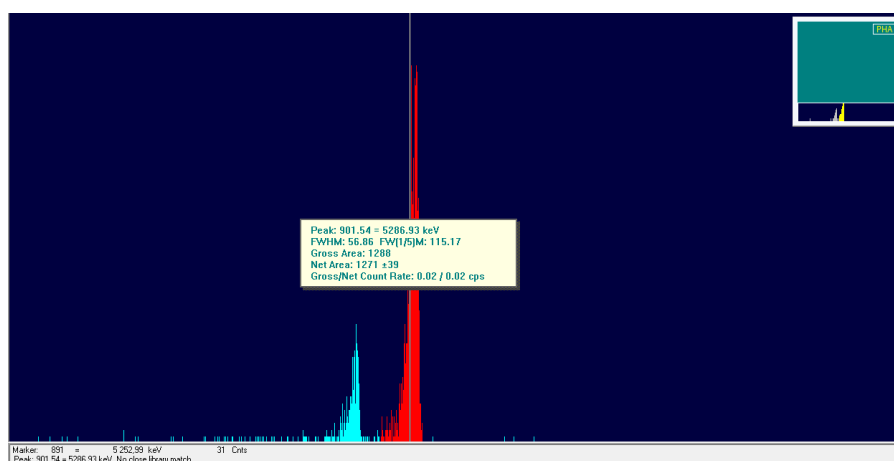
54. ábra: Balatonfüzfői minta spektruma 1. módszerrel ^{210}Po



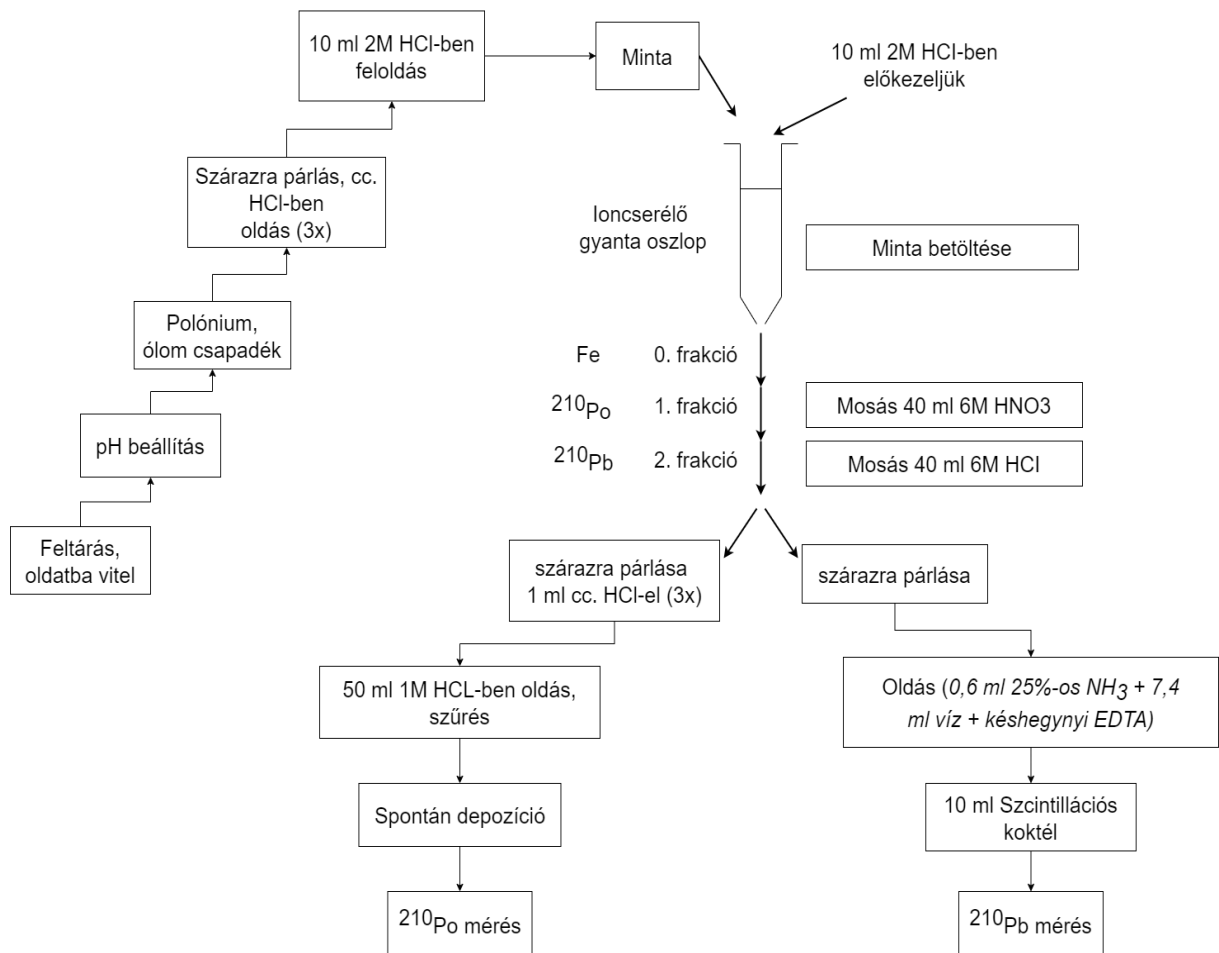
55. ábra: Csabrendeki minta spektruma 1. módszerrel



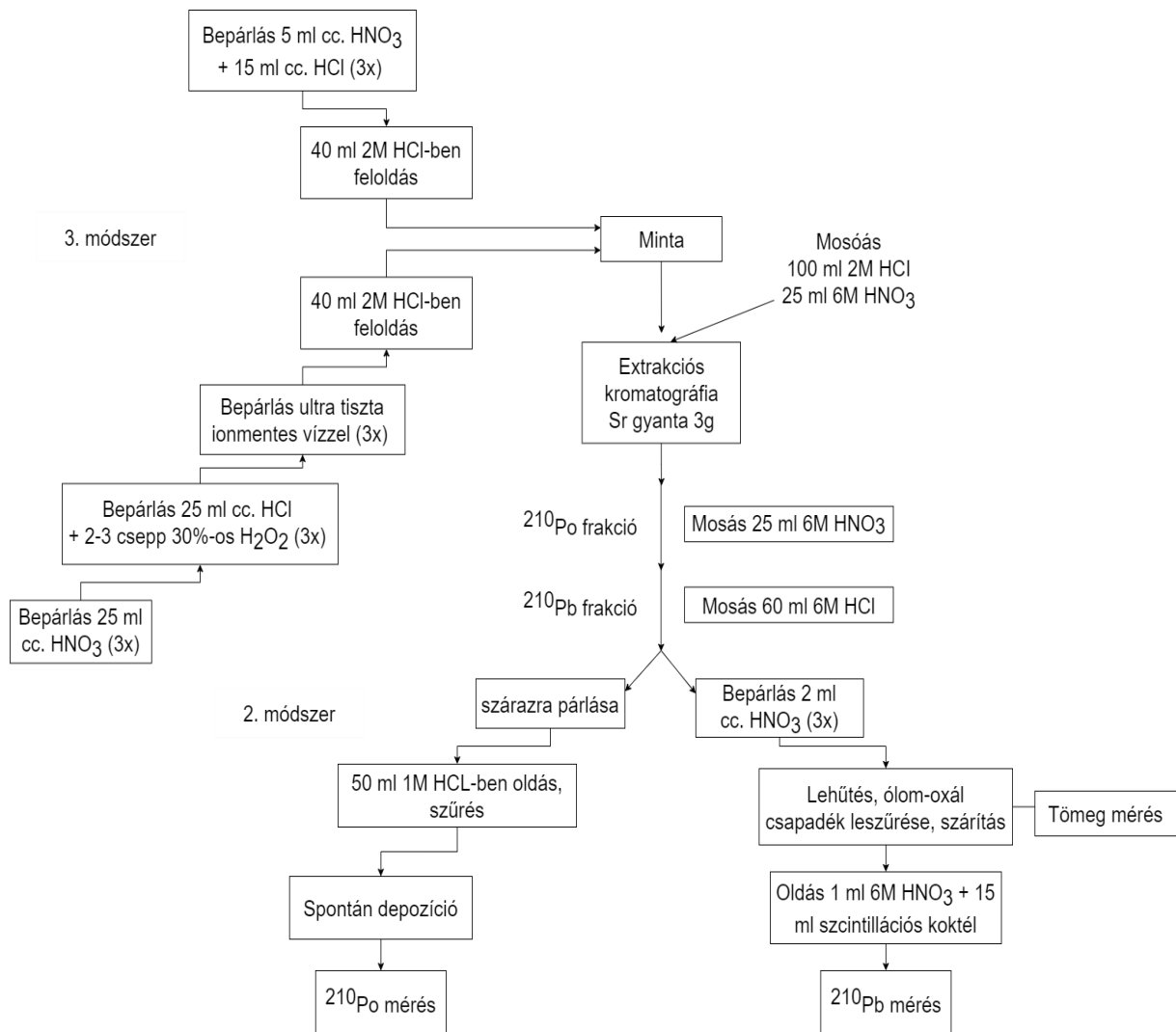
56. ábra: Balatonfüzfői minta spektruma 1. módszerrel ^{209}Po tracer



57. ábra: Balatonfüzfői minta spektruma 1. módszerrel ^{210}Po



58. ábra: 1. módszer részletes folyamatábrája



59. ábra: 2. és 3. módszer részletes folyamatábrája

Saját eredmények

A kutatómunkám a talajminták ^{210}Po és ^{210}Pb radionuklidok aktivitáskoncentrációjának meghatározása volt egy a standard módszernél rövidebb közös módszerrel. Jelenleg a három kiválasztott település talajmintájában azonos eljárással, azaz háromféle feltárási és izotópelválasztási módszerrel és a hagyományos standard módszerrel mértem. A háromféle feltárási és izotópelválasztási módszerből számolt ^{210}Po és ^{210}Pb radionuklidok aktivitáskoncentrációját a ^{210}Po esetében már össze tudtam hasonlítani a standard módszer eredményével, melyből a 2. módszer adta a várakozásomnak megfelelőt, és a ^{210}Pb esetében is ezen módszernél vannak értékelhető eredményeim, de ezt a standard módszerrel csak 2025. őszén tudom összehasonlítani, mivel a jelenlegi standard módszerből 1 év szükséges az ólom meghatározásához.

A kutatásomhoz talajminták gyűjtésében és a minták előkészítésében (szárítás, homogenizálás, valamint a gamma-spektrometriai és radonexhalációs mérésekhez megfelelő edénybe kimérés és eltárolás) a tanszéki munkatársak és témavezetőim segítettek.

A talajminták kimérését és előkészítését én végeztem az alfa-spektrometriai és LSC mérésekhez, mely tartalmazta a különböző módszerekhez tartozó feltárási lépéseket (kombinált savas feltárás, királyvizes nedves savas feltárás, összetett feltárás), valamint a módszerek (1., 2., 3.) izotópelválasztási lépéseit is. Továbbá forrásokat készítettem a mérésekhez mind a három módszer esetében mindkét radionuklidhoz, mivel a 2. módszernél a ^{210}Po esetében az irodalom által leírt eljárás nem hozott megfelelő eredményt, ezért változásokat eszközöltem a forrás készítési lépésben.

A gamma-spektrometriai és radonexhalációs mérések elvégzésében kaptam segítséget a tanszék munkatársaitól. Az alfa méréseket az Ortec Alpha Duo alfa-spektrometriai készülékkel én végeztem el, míg a béta méréshez a Perkin Elmer Tri-Carb 3170TR/SL LSC készülék megfelelő használatában a készüléket vezérlő program helyes beállításában témavezetőim segítettek.

A mérések során kapott spektrumokat és értékeket én értékeltem ki és számítottam belőlük az aktivitáskoncentrációkat, valamint előzetes következtetéseket vontam le a kapott eredményekből.