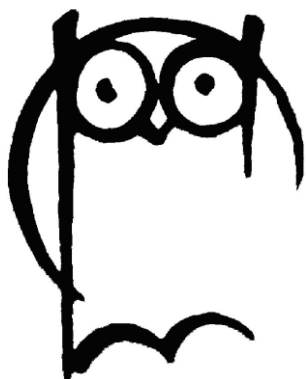




Debreceni Egyetem

Műszaki Kar

Környezet- és vegyészmérnöki Tanszék

**Radioaktív hulladéktároló légnemű ^{14}C
kibocsátásának kimutatása a közeli fák
évgyűrűiből**

Készítette: Kelemen Dorottya Ida

Vezetőkonzulens: Dr. Molnár Mihály

Társkonzulens: Janovics Róbert

Tanszékvezető: Dr. Bodnár Ildikó

Debrecen

2013.11.10.

Tartalom

1. Bevezetés.....	3
2. Szakirodalmi áttekintés	5
2.1 A radiokarbon keletkezése és körforgása.....	5
2.2 A ^{14}C nukleáris szennyező hatása	8
2.3 A légköri ^{14}C koncentráció változása az emberi tevékenység következtében	10
2.3.1 Suess-effektus.....	10
2.3.2 Atomfegyver kísérletek a légkörben	11
2.3.3 Nukleáris energiatermelés	14
2.3.4 Radiokarbon az élettudományokban és a gyógyszerkutatásban	16
2.4 Növényteni vonatkozások	17
2.4.1 Szén a növényekben, anyagcsere folyamatok	17
2.4.2 Radioaktív izotópok a növényekben	18
2.4.3 A légköri radiokarbon beépülése a fák évgűrűibe.....	19
2.5 A Püspökszilágyi RHFT bemutatása.....	21
2.5.1 A Püspökszilágyi RHFT környezeti monitoringja	24
3. Anyag és módszer	25
3.1 Püspökszilágyi fa évgűrű mintavétele.....	25
3.2 A fa minta előkészítési módszere.....	27
3.3 Minták égetése AMS feltárá rendszeren, grafit céltárgy előállítása	28
3.5 ^{14}C mérése AMS mérőkészülékkel	33
3.6 A mért ^{14}C eredmények megadásának módja	36
4. Eredmények.....	37
4.1 Kémiai kitermelés	37
4.2 A háttér fa évgűrűinek ^{14}C tartalma	39
4.3 A tároló közeli fa évgűrű ^{14}C tartalma	41
4.4 A RHFT területén nőtt fa ^{14}C adatainak összehasonlítása az atombomba csúcs idejéről származó faévgűrű sorozat eredményeivel.....	45
4.5 A tároló területén nőtt fa évgűrűiben mért többlet ^{14}C aktivitás meghatározása és értelmezése	46

5. Összefoglalás	47
Felhasznált irodalom	49

1. Bevezetés

A szén a legrégebbi időtől ismert elem, amelynek különböző módosulatai fordulnak elő a természetben. Megtalálható minden szerves élő anyagban. A szénnek háromféle természetes izotópja van : a 12-, 13- és 14-es tömegszámú izotópok. Ezek közül a leggyakoribb a ^{12}C , mely a szénminták mintegy 98,9%-át teszi ki, a maradékot túlnyomóan a ritkább ^{13}C képviseli. Az előbbi két szénizotóp (12-es és 13-as) stabil, a legritkább előfordulású ^{14}C (radiokarbon) azonban instabil, radioaktív. Tulajdonságai révén főként a történettudomány területén használják, azonban fontos szerepet játszik a természetes szén ciklus tanulmányozásában is és még rengeteg más kutatási lehetőséget rejt magában.

Környezetmérnökként legfőbb feladatommak tartom a környezetre és emberi egészségre káros hatások felkutatását és lehető legkisebb mértékre való csökkentését. Az atomkor beköszöntével, a szándékosan vagy hulladékként a nukleáris iparban mesterségesen előállított ^{14}C nyomon követése alapvető feladata lett a környezetvédelemnek, a szén biológiai, élettani jelentősége miatt. Az emberi, azaz antropogén behatások okozta szennyezések feltérképezése megfelelő műszerezettséget igényel. Ezeket a lehetőségeket kihasználva környezetünk feltérképezése, monitorozása válik elérhetővé.

Számos olyan laboratórium épül ma is a világban, melynek feladata a radiokarbon mennyiségének meghatározása a legkülönbözőbb szerves és szervetlen mintákban, a lehető legkevesebb anyaghasználat és a lehető legrövidebb mérési idő mellett. Magyarországon a radiokarbonméréseknek több évtizedes hagyománya van az MTA debreceni Atommagkutató Intézetében. Ezen hagyomány továbbvitelét biztosíthatja az ETHZ svájci szövetségi műszaki kutatóintézettel (Eidgenössische Technische Hochschule, Zürich) közös fejlesztésben 2011 nyarán üzembe helyezett MICADAS típusú gyorsító-tömegspektrométer (Accelerator Mass Spectrometer: AMS). A kifejlesztett rendszer megfelel az összes olyan követelménynek, amelyek a nagy pontosságú ^{14}C mérésekhez szükségesek.

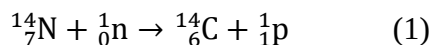
TDK dolgozatom témája a Radioaktív hulladéktároló légnemű C-14 kibocsátásának kimutatása a közeli fák évgyűrűiből. A következőkben ismertetném a szükséges elméleti

háttérrel. Majd ezt követően bemutatom a mintavétel és minta-előkészítés menetét, az alkalmazott műszerek felépítését és használatát, majd azon keresztül a ^{14}C meghatározás alapjait, valamint a mintavételezés helyszínét. Végül pedig a méréseim eredményeit és kiértékelését. [1-4]

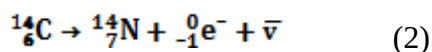
2. Szakirodalmi áttekintés

2.1 A radiokarbon keletkezése és körforgása

A földi élet szempontjából egyik legjelentősebb elem a szén, melynek 14-es tömegszámú radioaktív izotópja (radiokarbon, ^{14}C) természetes úton van jelen a Földön. Az atmoszféra felső rétegeiben a kozmikus sugárzás jelentős mennyiségben hoz létre szabad neutronokat. A kozmikus sugárzás hatására keletkező neutronok közül azok, melyek nagy energiájúak főként tríciumot, a kis energiájúak pedig radiokarbont hoznak létre. Az 1 billióból mindössze egyszer előforduló szénizotóp (^{14}C) a földi légkör felső rétegében keletkezik kozmikus sugárzás hatására stabil nitrogén-14 (^{14}N) izotópból egy proton neutronná alakulásával, így az atommagjában hat proton mellett nyolc neutron található. A meghatározó termelődési folyamatát az 1. egyenlet szemlélteti:



Ez az instabil izotóp meghatározott felezési idő mellett radioaktív sugárzás kíséretében, β -bomlással fokozatosan visszabomlik stabil nitrogénizotóppá (^{14}N) (lásd 2. egyenlet). A felezési idő, mely során a radioaktív izotóp atomjainak száma a felére csökken a szénizotóp esetében 5730 ± 40 év.



A szénizotóp felezési idejére alapuló abszolút keltezési módszert Willard Frank Libby amerikai kémikus írta le először a második világháború idején. Libby 1949-ben publikálta az első radiokarbon módszerrel számolt adatait, 1960-ban pedig kémiai Nobel-díjat vehetett át a módszer kidolgozásáért. A radioaktivitás csökkenésének mérésén alapuló időmérés alapjául a radioaktív bomlás törvénye szolgál, amely szerint zárt rendszerben a minta adott izotópjának radioaktivitása (A) az idővel folyamatosan csökken úgy, hogy a csökkenés arányának természetes logaritmus egyenesen arányos az eltelt idővel (Δt) az adott izotópra jellemző bomlásállandó (λ) mellett (lásd 3. egyenlet).

$$\Delta t = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{A_{\text{kezdő}}}{A} \quad (3)$$

Mivel a kozmikus sugárzás intenzitása közel állandó, és a Föld korához képest a radiokarbon felezési ideje rövid, a kozmikus hatásra keletkező (azaz kozmogén) ^{14}C radioaktív bomlási egyensúlyi állapotban van, mennyisége közel állandó a Földön. Ez az egyensúlyi izotóparány a stabil 12-es tömegszámú szénre vonatkoztatva rendkívül kicsi érték, $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 1,17 \cdot 10^{-12}$. Számítások szerint 2–2,5 ^{14}C atom keletkezik másodpercenként a Föld felületének egy négyzetcentiméterére vonatkoztatva. A radiokarbon a légkörben gyorsan oxidálódik szén-dioxiddá, és folyamatosan „nyomjelzi” a légköri szén-dioxidot, melynek fajlagos aktivitása ~ 14 bomlás/min/g szén. A Földön megtalálható ^{14}C -tartalom részévé vált a földi szén ciklusnak, Az akkumulálódott ^{14}C -mennyiség a Földön 51 tonna, ami kicserélődési folyamatok révén a hidro-, bio-, illetve atmoszférában 94,3%, 3,8%, illetve 1,9% arányban oszlik el.

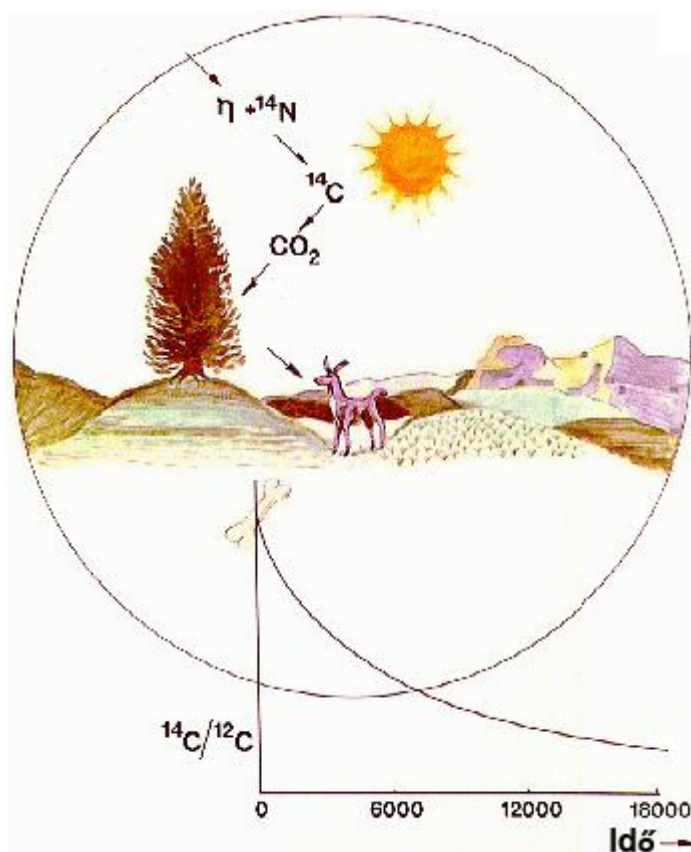
A ^{14}C körforgásának kiinduló folyamata tehát a légköri radiokarbon szén-dioxiddá alakulása ($^{14}\text{CO}_2$). A CO_2 fotoszintézissel beépül a növényekbe, majd ez a szén a tápláléklánc útján bekerül más élő szervezetekbe (lásd 1.ábra). Az anyagcsere-folyamatok során természetesen a $^{14}\text{CO}_2$ is folyamatosan beépül és távozik az élőlényekből. Az élőlények szénére jellemző biológiai felezési idő - amely alatt az élőlényt alkotó szerves vegyületek fele kicserélődik - néhány év, ami igen csekély idő a radiokarbon felezési idejéhez képest. Így, amíg élnek, az élőlények biológiai szénének fajlagos aktivitása folyamatosan követi az atmoszférikus szén fajlagos radiokarbon aktivitását, azaz értéke közel állandó ~ 14 bomlás percenként 1 gramm az élő szervezetben található szénre vonatkoztatva.

Az anyagcsere folyamatok megszűnte után (halál) nem épül be további ^{14}C a szervezetbe, ezért a biológiai szén ^{14}C koncentrációja a felezési időnek megfelelően exponenciálisan csökken. Az elhalt élőlény maradványaiban biológiai formában kötött szén a légköri szénből radiokarbont tovább nem vesz fel, így ettől a pillanattól a ^{14}C -re nézve zárt rendszernek tekinthető. A kezdeti ^{14}C -aktivitás, amely az anyagcsere megszűntekor jelen van az adott szervezetben, ilyen módon ismertnek tekinthető. Ismerve az anyagcsere folyamat alatt az élő anyag széntartalmának fajlagos

radioaktivitását (A_0 = kezdeti aktivitás), majd az anyagcsere folyamat megszűnte után jelenleg megmérve a fajlagos aktivitást (A = jelenlegi aktivitás), a bomlási állandó (λ) ismeretében kiszámítható az életfolyamatok megszűnésének ideje, azaz a minta kora (t), a 4. Egyenlet segítségével:

$$A = A_0 \times e^{-\lambda t} \quad (4)$$

Ez a radiokarbon kormeghatározás elve. A módszernek nagy jelentősége van a geológiában, a régészetben és a hidrológiában. Segítségével a leletek maximum 50 ezer éves korig dátumozhatók.



1.ábra A kozmikus radiokarbon beépülése és ^{12}C arányának időbeli változása

(Forrás: <http://c14.arch.ox.ac.uk/embed.php?File=dating.html>)

A radiokarbon (^{14}C) tartalom az atmoszférában nem mondható teljesen állandónak, melynek oka többek között a légkörben lévő CO_2 mennyiségének változása, a

klímaváltozás által okozott szén ciklusban történő változás, az óceánok mélyéről feláramló inaktív CO_2 stb. A múlt század végétől az iparosodás miatt fokozódott a fosszilis tüzelőanyagok égetése, melynek eredményeként nőtt a légkör CO_2 koncentrációja. Tekintettel arra, hogy a fosszilis eredetű CO_2 inaktív, így ezzel a hígítással fokozatosan csökken a légkör szén ^{14}C koncentrációja. Ezt nevezzük *Suess-effektus*nak. Ennek következtében 1850-hez viszonyítva 1950-ig a csökkenés 3% volt. [2,3,5-7]

2.2 A ^{14}C nukleáris szennyező hatása

A kozmogén ^{14}C sugárzó elem, évente $12\ \mu\text{Sv}$ effektív dózist eredményez, amely azt a dózismennyiséget jelenti, amely az emberi szervezetet érő részbesugárzáskor az egész szervezet kockázatát kifejezi.

A radiokarbon bomlásának alapját az adja, hogy az atommag tovább csökkentheti energiáját, ha változatlanul maradó nukleonszáma mellett, a protonok száma a legelőnyösebb értékre módosul, azaz az atommagban egyes neutronok protonná alakulnak át. Ezt sem a magerő, sem a Coulomb-erő nem képes előidézni, mégis megfigyelték azt a folyamatot, hogy az atommag elektront sugároz ki, miközben megnő elektromos töltése, a neutronból proton keletkezik. Ezt nevezzük negatív β -bomlásnak, amely a ^{14}C bomlásakor is lejátszódik.

A radioaktív anyagok származhatnak mind természetes, mind antropogén forrásokból. A származástól függetlenül előfordulhatnak valamennyi környezeti elemekben. A magsugárzások, miközben az anyagon áthatolnak, azzal kölcsönhatásba is léphetnek. A sugárzás intenzitása csökkenhet, másodlagos sugárzások léphetnek fel, az anyag a legkülönbözőbb kémiai átalakulásokon is keresztül mehet. A nagyenergiájú sugárzás által fejt ki káros biológiai hatást, hogy ionokat kelt, azok pedig megzavarják az élő sejtekben enzim-katalizátorok által finoman szabályozott biokémiai reakcióhálózatot. Az ionok sűrűsége lényegében a sugárzás által egységnyi tömegű élő anyagban leadott ionizációs energiával arányos. A leadott, elnyelt energia által okozott hőmérsékletemelkedés elpusztíthatja a sejteket (~égés), ill. ha a magreakció során megváltozik az anyag kémiai tulajdonsága, akkor ez megakadályozhatja a sejt biológiai

funkciójának betöltését. A dózis egysége: $1\text{Gy} = 1\text{ J ionizációs energia/kg.}$ (Ilyen nagy dózisértékek ritkán fordulnak elő.)

Beszélhetünk még a hatásos dózistról, vagy dózisegyenértékről, ami a sugárzástípus biológiai hatásosságát jellemzi. Ennek egysége az $1\text{ Sv} = 1\text{ J/kg.}$ Lakosságra vonatkoztatott gyakorlat a mSv -t használja a dózisegyenérték mértékéül. (Összehasonlítási alapul: tudjuk, hogy 10 Sv egész test dózis feltétlenül halálos.)

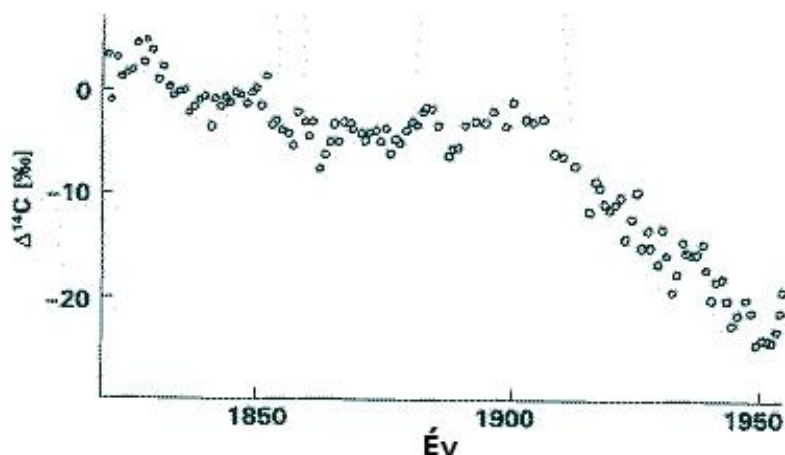
A növények a talajjal, a levegővel és a vízzel állandó dinamikus kölcsönhatásban vannak, melynek eredményeként alakul ki a növényvilág radioaktivitása. A növények szervezetében növekedési, fejlődési rendellenességek kialakulása nélkül is jelentős mennyiségű radioaktív izotóp halmozódhat fel, azonban nagyobb mennyiség felhalmozódása esetén az állati vagy emberi szervezetben már jelentős káros elváltozásokat okozhatnak.

A radioaktív izotópok igen nagy dózisa azonban már kedvezőtlenül hat a növények növekedésére és fejlődésére is. A növények radioaktivitásának – a környezet egyéb elemeihez hasonlóan-természetes (geológiai viszonyok által meghatározott, ill. kozmikus sugárzás) és mesterséges (atomrobbantások, atomerőművek, nukleáris létesítmények, izotóp laboratóriumok stb.) forrásai lehetnek. A mesterséges antropogén tevékenységek hatására ez a koncentráció megnövekedhet. Emberi tevékenységek közül a legmeghatározóbb a nukleáris fegyverkísérletek, a nukleáris ipar és azok hulladékai. Az atomerőművekben, a fűtőanyagban és a hűtőkörben is termelődik ^{14}C , mely légnemű és folyékony formában kerül kibocsátásra. Radiokarbont az atomerőművek üzemanyagciklusában és a nem nukleáris energiatermeléshez kapcsolódó tevékenységek során keletkező hulladékok is tartalmaznak. Az inaktív és aktív hulladékokban a tárolás során korrózió, mikrobiális folyamatok, hidrolízis (ha radioaktív hulladékokról van szó, akkor radiolízis) következtében gázfejlődés megy végbe. Az így keletkező gázok a környezetbe (levegőbe, talajba, majd a talajvízbe) kerülnek. [2,3,6,8-10]

2.3 A légköri ^{14}C koncentráció változása az emberi tevékenység következtében

2.3.1 Suess-effektus

Az ipari forradalom óta a technika fejlődéséhez szükséges egyre növekvő energiaigényt jórészt fosszilis tüzelőanyagok elégetésével állítják elő. Mivel a fosszilis tüzelőanyagok alapjául szolgáló szerves anyagok sok százezer vagy millió éve kizáródtak a biológiai szénciklusból, a föld alatt bennük a kozmogén radiokarbon már elbomlott, így mára inaktív, ^{14}C -mentes szenet tartalmaznak. Az inaktív szén a tüzelőanyagok égetése során a légköri szénhez keveredik, s így hígítja annak ^{14}C -tartalmát (lásd 2.ábra).



2.ábra Az ipari forradalom hatására a légkör $\text{C}14$ koncentrációjának csökkenése(felhígulása)

(forrás: <http://www.wort-und-wissen.de/index2.php?artikel=sij/sij51/sij51-3.html>)

Ezzel a hatással ellentétes folyamat, hogy a nukleáris technika kialakulásával a légköri ^{14}C -nek mesterséges forrásai is létrejöttek. A légköri nukleáris fegyverkísérletekkel a 20. század közepén néhány évre a légkör természetes ^{14}C koncentrációját az emberiség

globális szinten a duplájára emelte. Ez a szignifikáns csúcs (^{14}C atombomba-csúcs) minden abban az időben képződött légköri szén-tartalmazó anyagban markánsan jelen van, mint például az 1961-es évet jelző éles csúcs. A természetes háttérszint megkettőzése egy ilyen gyenge béta-sugárzó izotóp esetében természetesen komoly egészségügyi kockázattal nem járt, de a jelenségnek a későbbiekben óriási tudományos jelentősége s bizonyos értelemben haszna lett (a fital minták évre pontos kormeghatározásnál).

Az ember által közvetben okozott ionizáló sugárforrásoktól származó hatások a röntgen-sugárzás felfedezésétől, azaz 1895-től érik az emberiséget. Jelenlegi forrásai közül legismertebbek a működő atomerőművek – beleértve az egész nukleáris fűtőanyag ciklust –, a radioaktív hulladékok és az atomfegyver kísérletek, de ide tartozik a radioizotópok előállítás, felhasználása és a lakosság mesterséges eredetű sugárterhelésének nagyobb részét jelentő orvosi alkalmazások is.

Az emberi tevékenység következtében a légköri ^{14}C koncentráció sokkal gyorsabban változott, mint természetes körülmények között. Az ipari forradalom általi atmoszférikus ^{14}C szint változása előtt képződött leletek kormeghatározása általában zavartalan volt. Az atombomba kísérletek következtében éves pontossággal meg lehet határozni olyan leletek korát, melynek képződése egy évnél rövidebb ideig tartott és a lelet az atmoszférikus szénrel kölcsönhatásban volt. (pl. meghatározhatók elhullott agancsok kora, bor, whisky évjárata, méz, papírlapok kora). [3]

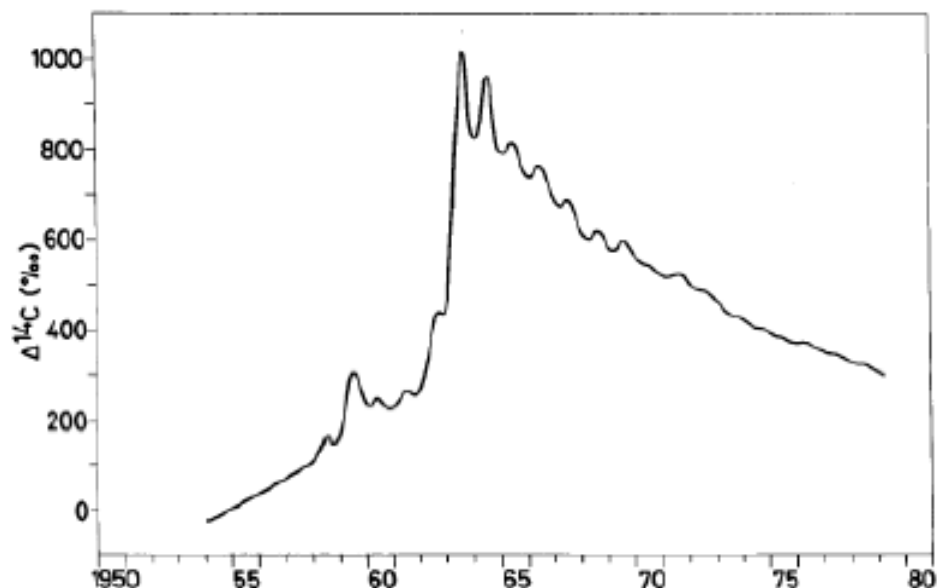
2.3.2 Atomfegyver kísérletek a légkörben

Az atomerőművek hatásánál sokkal erőteljesebb, de mára már a légkörből nagyrészt kimosódott ^{14}C -többletet adtak az 1960-as évek elején a világ különböző pontjain nagy számban végrehajtott légköri nukleárisfegyver-kísérletek. Ezeknek a fegyvereknek a robbantásakor jelentős mennyiségű neutron szabadul fel, melyek a kozmikus sugárzás hatására keletkező neutronokhoz hasonlóan radiokarbont termelnek. A keletkezett radiokarbon becslése szempontjából a leglényegesebb a szabaddá váló neutronok száma. 1945-től 1962 végéig mintegy 400 nukleáris fegyverkísérletet hajtottak végre,

összhatóerejük 511 millió tonna (Mt) trinitro-toluol (TNT) ekvivalens volt, ami jelentős mennyiségű többlet ^{14}C -t juttatott a légkörbe (lásd 1.táblázat). Ez a mennyiség 1963-ban 100%-os többletet jelentett az északi félgömb troposzférikus ^{14}C koncentrációjában az 1850-es referencia szinthez képest. Csaknem az összes légköri kísérlet az északi félgömbön zajlott le. Az értékek a két félgömbön 1970-től kezdve azonosak, ami azt bizonyítja, hogy a ^{14}C az egész légkörben egyenletesen elkeveredik (lásd 3.ábra).

1.táblázat Az atmoszférában 1945 és 1962 között robbantott nukleáris töltetek hajtóereje
(forrás:Hertelendi Ede:Légköri atomfegyver kísérletek által termelt radiokarbon beépülése
fák évgyűrűibe)

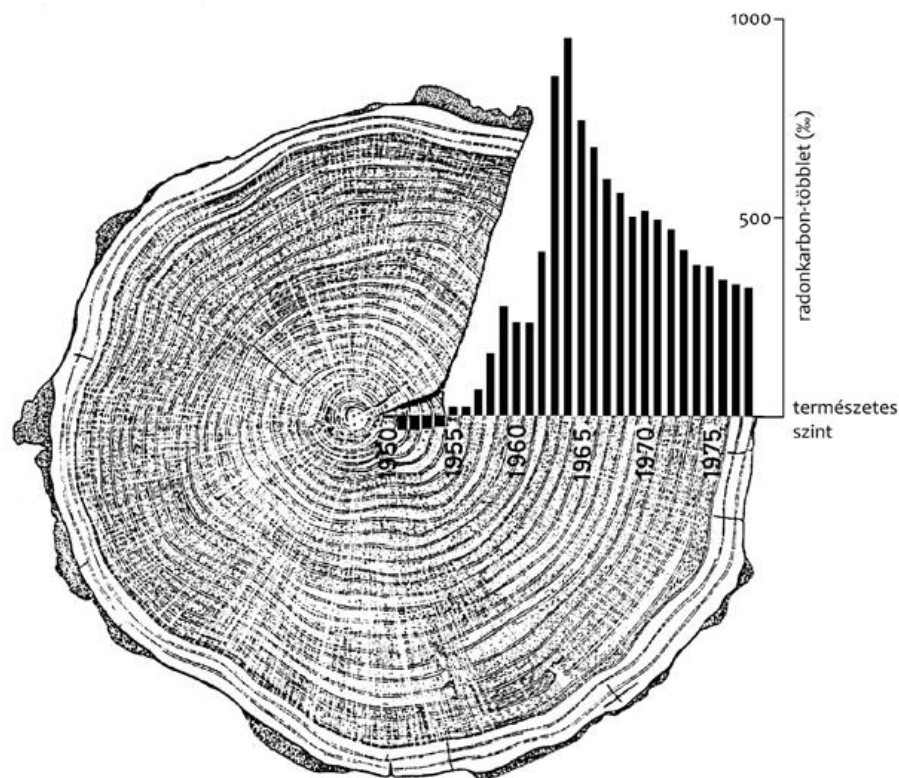
Év	fissziós hatóerő, Mt		fúziós hatóerő, Mt	
	légköri kísérlet	Föld felszínéhez közel végzett kísérlet	légköri kísérlet	Föld felszínéhez közel végzett kísérlet
1945-51	0,19	0,57	-	-
1952-54	1,0	37,0	-	22,0
1955-56	5,6	7,5	5,4	9,5
1957-58	31,0	9,0	26,0	19,0
1959-60	-	-	-	-
1961	25,0	-	95,0	-
1962	76,0	-	141,0	-
Összesen:	139,0	54,0	267,0	51,0



3.ábra A ^{14}C koncentráció változása az északi félgömbön légköri nukleáris fegyverkísérletek következtében
(forrás:[5])

1958 novemberében hatályba lépett a nukleáris fegyverkísérleteket korlátozó Atomcsend Egyezmény, amely az aláíró és atomfegyverrel rendelkező országok számára betiltotta mind a légköri, mind a földalatti atomfegyver kísérleteket. A Részleges Atomcsend Egyezmény hatályba lépéséig, 1962 végéig több mint 300 Mt össz-hatóerejű kísérletet végeztek. 1962 után csak Franciaország és Kína végzett jelentősebb légköri nukleáris fegyverkísérletet.

A téma keretében fontos megemlíteni Hertelendi Edét, aki a légköri ^{14}C koncentráció változását debreceni faévgűrűk vizsgálatán keresztül tanulmányozta. Eredményei alátámasztották azt a tényt, hogy a fák légköri CO_2 megkötése révén az évente képződő azonosítható évgűrűikben raktározzák az egyes évre jellemző légkörben levő radiokarbon mennyiségét. Jól látható a nukleáris fegyverkísérletek általi közel megduplázódott (+940‰ a természetes szint fölött) koncentráció, majd a beszüntető egyezmény utáni csökkenés(lásd 4.ábra). [2,3,5,6,11-13]



4.ábra A ^{14}C atombomba-csúcs egy 1945-től 1980-ig növekedett fa évgyűrűiben
(forrás:[12])

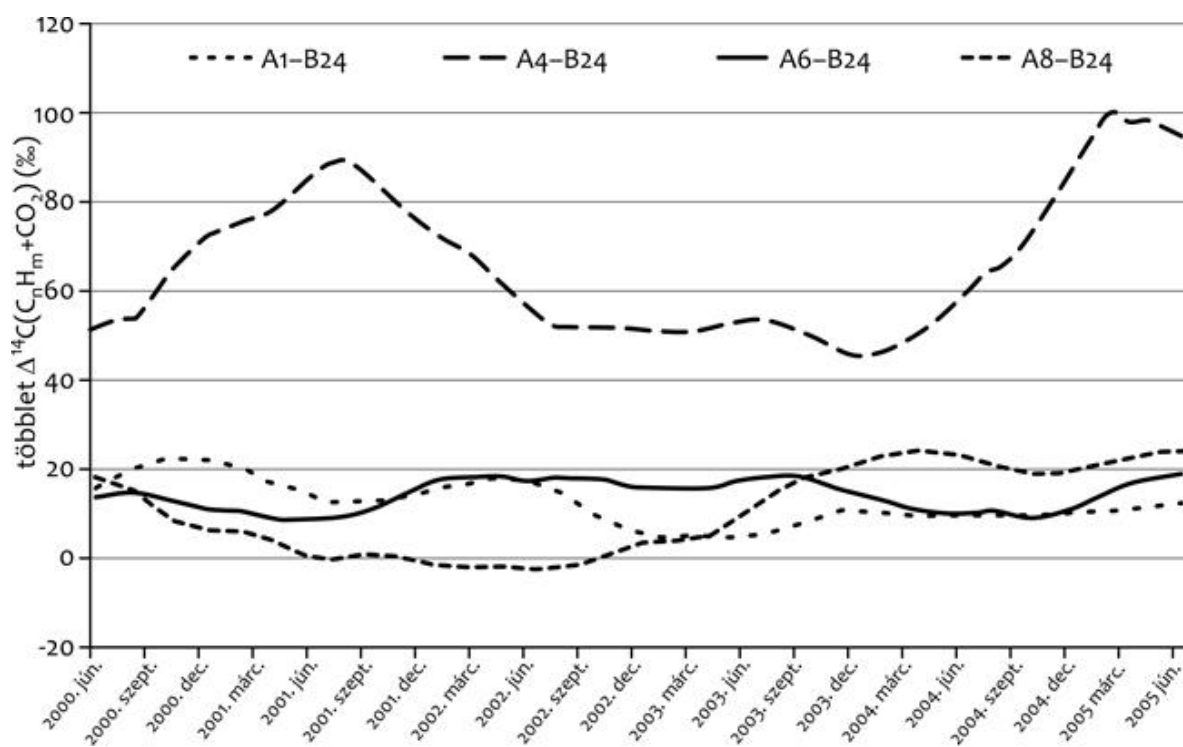
2.3.3 Nukleáris energiatermelés

Az atomerőművek az atommaghasadás során keletkezett hőt alakítják elektromos árammá. Az első atomerőművet Obnyinszkban, Oroszországban állították üzembe, 1954-ben. Azóta a világ sok részén épültek atomerőművek. Ezek száma mára már meghaladja az 500-at. Az üzemelő atomerőművekben a fűtőanyag hasadása, illetve – a nagy intenzitású neutron-sugárzás hatására – a szerkezeti és hűtőanyagok aktiválódása során keletkeznek radioaktív anyagok.

A nukleáris energiát meglehetősen szigorúan ítélik és figyelik meg. Az erőművekből kibocsátott radionuklidok minősége és mennyisége a reaktor típusától, konstrukciójától, az erőmű korától, az üzemanyag kiégettség fokától (azaz az utolsó üzemanyag behelyezés óta

eltelt időtől), hulladékkezelési technológiától, stb. függ. A kibocsátás az időben nagymértékben ingadozhat, jelentősebb része a karbantartás során távozik. Az üzemelő atomerőművek által kibocsátott radionuklidok vagy a légkörbe vagy a vízi környezetbe jutnak. A légkörbe kijutó radioizotópok mennyiségének minimalizálása végett az erőmű légterét a környezettől igyekeznek jól elszigetelni. A radioizotópok termelése, felhasználás során, illetve a nukleáris iparban radioaktív hulladékok keletkeznek. Beláthatatlan az, hogy a ma biztonságosnak tűnő hulladék elhelyezése néhány ezer év múlva okoz-e környezeti szennyezést. Tény, hogy radioaktív hulladék már jelen van, tehát minél biztonságosabban el kell helyezni. Ezt az emberi és természeti környezettől való minél tökételesebb elszigetelésével – azaz a hulladékok szilárd halmazállapotba és vízzoldhatatlan formába hozásával, acéltartályokba való csomagolásával, a tároló létesítményeknél falakkal, szigetelésekkel, földémszerkezetekkel, vízelvezetéssel, vízzáró és izotóp megkötő anyagokkal – és az alkalmas geológiai környezet biztosításával lehet legjobban elérni. A nagyaktivitású hulladékoknál hűtésről, szellőzésről néhány évig gondoskodni kell, így a végleges elhelyezéssel kapcsolatban még ma is folynak a kutatások. Nem elképzelhetetlen egy olyan megoldás sem, hogy a hosszú felezési idejű radionuklidokat viszonylag rövid (10 év alatti) felezési idejű radioizotópokká alakítsák, és a lebomláshoz szükséges 100-120 év garantáltan ellenőrzött elhelyezése már biztosíthatónak látszik.

Az atomkor beköszöntével, a környezetvédelem alapvető feladata lett a szándékosan vagy hulladékként a nukleáris iparban mesterségesen előállított ^{14}C nyomon követése. A Paksi Atomerőmű üzeme során is folyamatosan figyelik annak légnemű ^{14}C -kibocsátását, közvetlenül a szellőztető kéményekben, illetve az erőmű környezetében telepített megfigyelőállomásokon is, egy távolabbi referenciaállomáshoz (B24, Dunaföldvár) viszonyítva (lásd 5.ábra). Az öt évet feldolgozó eredmény sor azt mutatta, hogy a szénhidrogén és szén-dioxid frakcióját együttesen vizsgálva az atomerőmű közvetlen környezetében, már 1–2 kilométeren belül is csak alig érzékelhető az a ^{14}C -többség, amelyet a kéményeken keresztül kijuttat a környezetbe. [2,11]



5.ábra A Paksi Atomerőműtől eredő légköri ^{14}C -többség alakulása közeli megfigyelőállomásokon (A1-, A4-, A6- és A8-állomás), %-ben kifejezve a természetes háttérszint (B24) felett

(forrás:[2])

2.3.4 Radiokarbon az élettudományokban és a gyógyszerkutatásban

A radiokémia, a radioaktív izotópok tulajdonságaival, előállításával és alkalmazásával foglalkozó tudomány. Az alkalmazási területek egyike az orvosbiológiai kutatások témaköre, a nyomjelzés elve. Ez a rendszeres klinikai alkalmazás az 1950-es években terjedt el számos országban, mivel ebben az időben a mesterségesen előállított radioaktív izotópok egyre jobban hozzáférhetővé váltak. A radioaktív dózis az emberi szervezetre vonatkoztatva szigorúan szabályzott, ez 1mSv-nél kisebb adagra korlátozódik. Egy ilyen radio-gyógyszer jellemzően néhány órás felezési idejű és nem mutat jelentős szöveti kötődést, tehát ezek az izotópok részt vesznek a fiziológiai, biokémiai folyamatokban, de anélkül, hogy azok végbemenetelét befolyásolnák. A hosszabb felezési idejű izotóppal jelzett gyógyszerek radioaktivitását viszont csökkenteni kell annak érdekében hogy a

sugárzásnak való kitettség az előírt határértéken belül maradjon. Így viszont az emberi szervezetbe juttatható radioaktivitás szintje túl alacsony ahhoz, hogy normál mérési módszerekkel mérhető legyen.

Ha a gyógyszert egy olyan ritka izotóppal jelölik meg, mint a ^{14}C , a részecske nyalámban lévő radiokarbon aránya az összes szénhez viszonyítva felhasználható a gyógyszer vérbeli, szöveti, sejtbeli koncentrációjának kiszámítására, olyan alsejtekben is mint például a fehérvér és a DNS. A szén az AMS gyógyszerkutatásban leggyakrabban vizsgált elem.

Ez az oka annak, hogy a modern gyógyszerkutatás egyre gyakrabban használja a radiokarbont. Korábban igen nagy dózisokat és hagyományos méréstechnikát (LSC) használtak. Ennek megfelelően a gyógyászati, gyógyszerkutatási területeken keletkezett kis- és közepes aktivitású radiokatív hulladékokban bizony jelentős mennyiségben lehet ^{14}C -el jelzett szerves anyag. A püspökszilágyi RHFT izotópleltára alapján a telephelyen összesen $3,60\text{E}+12 \text{ Bq } ^{14}\text{C}$ aktivitást helyeztek el, különféle kémiai formákban. [14,15]

2.4 Növényteni vonatkozások

A növények környezetükkel szoros kapcsolatban vannak, onnan veszik fel szükséges tápanyagaikat: a vizet és ásványi sókat, a szén-dioxidot, valamint a fényenergiát. Mivel kutatásom során a fa szervesanyagát vizsgálom, fontos kitérni a témakör növényteni vonatkozásaira.

2.4.1 Szén a növényekben, anyagcsere folyamatok

A növények összetétele az alábbi százalékos egységekkel jellemezhető: víz (6-96%), szárazanyag (4-88%). A szárazanyagon belül 88-94% szervesanyag, a maradék 6-12% pedig szervetlen (N és hamuelemek). A szárazanyag kémiai összetétele: 47-52% C, 40-42% O, 6-7% H és 2-10% egyéb elem.

A növényeknek is az élő szervezetekre jellemző életjelenségeik vannak, mint az anyagcsere, ingerlékenység, mozgás, növekedés, fejlődés, szaporodás. Az anyagcserének

felépítő és lebontó folyamatai vannak. A sejt a felépítő folyamatok során kis molekulákból nagyobb szerves anyagokat hoz létre redukálva a beépített anyagot, míg a lebontó folyamatokban a szerves vegyületeket kisebb molekulákká oxidálva szerves vagy szervetlen anyagokká alakítja. Az előzőhöz energia szükséges, míg az utóbbi energiát szabadít fel, amelyet a sejt felhasznál a működése során. A növények anyagcseréjében főleg a szénhidrátok játszanak fontos szerepet. A cellulóz egyenes, el nem ágazó láncú, összetett szénhidrát, a növényi sejtek szilárdító sejtfalát alkotja. Ezzel a cellulóz a legelterjedtebb szerves vegyülete Földünknek. A szénhidrátok fontos építőköve a C, és mivel a vizsgálataim a fa szervesanyagán belül a C tartalomra terjednek ki, leginkább a növények C anyagcseréjére szeretnék kitérni.

A szén felvétele a növények fotoszintézise révén történik légköri CO_2 megkötésével. A növények autotróf élőlények, tehát szervetlen anyagokból képesek szerves anyagokat felépíteni. A fotoszintézis a fényszakaszból(fotolízis) és az úgynevezett sötétszakaszból áll. A fényszakasz során a vízmolekula a fényenergia hatására lebomlik, míg a sötétszakasz során a CO_2 redukálódik a vízmolekulából származó hidrogénnel. A fotoszintézis helyszíne a levél, ahol gázcsere nyílásokon keresztül áramlik be diffúzióval a CO_2 . A szén asszimilációja felépítő, energiaigényes folyamat. A megkötött szén energia formájában raktározódik úgy, hogy a szőlőcukor oldott állapotban a levelekből a szállításra differenciálódott hánccsszöveten át a raktározó szervekhez jut. Ezekben a raktárakban a szőlőcukor keményítővé polimerizálódik és a szintelen szintestekben felhalmozódik. Ez tehát a C megkötése szervesanyagként, az ún. Calvin ciklus. [16-18]

2.4.2 Radioaktív izotópok a növényekben

A növények a talajjal, a levegővel és a vízzel állandó dinamikus kölcsönhatásban vannak, ennek eredményeként alakul ki a növényvilág radioaktivitása. A talaj hatása meghatározó, mivel az ásványi anyagok többsége a talajból a gyökérzetén keresztül kerül a növényi szövetekbe. A felvett ásványi anyagok összetételét, mennyiségét, és akkumulálódását elsősorban a talaj fizikai és kémiai jellemzői határozzák meg, ugyanakkor a növények is

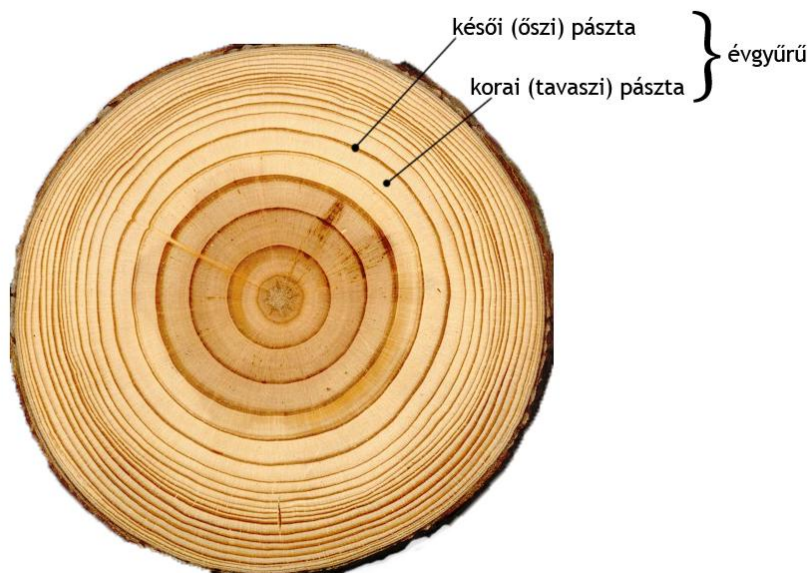
módosítják a talajban lévő radioaktív anyagok koncentrációját. Amint az előbbi témakörben ismertettem a növények CO₂ felvétele a leveleken keresztül történik, így kerül a szén radioaktív izotópja a növény szöveteibe a fotoszintézis által. Tehát a radioaktív anyagok felvétele nemcsak a talajból, hanem közvetlenül a levegőből is történik. A növények szervezetében növekedési, fejlődési rendellenességek kialakulása nélkül is jelentős mennyiségű radioaktív izotóp halmozódhat fel. Nagyobb mennyiség felhalmozódása esetén az állati vagy emberi szervezetben már jelentős káros elváltozásokat okozhatnak.

A radioaktív izotópok nagy dózisa kedvezőtlenül hat a növények növekedésére, fejlődésére. A növények radioaktivitásának a korábban már ismertetett természetes (kozmikus sugárzás) és mesterséges (atomrobbantások, atomerőművek, nukleáris létesítmények, izotóp laboratóriumok) forrásai lehetnek. A növények természetes radioaktivitását okozó elemek közül a ⁴⁰K radioaktív izotópot érdemes megemlíteni, ugyanis a kálium a növények esszenciális makro elemei közé tartozik, így valamennyi növényben előfordul. A kutatás szempontjából azonban a ¹⁴C izotóp lényeges, amit a fák az évgűrűk cellulózanyagába is beépítenek. Ez lehetővé teszi az évgűrűk vizsgálata alapján az egyes évek átlagos légköri ¹⁴C-koncentrációjának megállapítását. [6]

2.4.3 A légköri radiokarbon beépülése a fák évgűrűibe

Az élővilágban egyedül a fáknek alakult ki az a sajátossága, hogy növekedésüket évgűrűikkel hosszú életük folyamán éves időfelbontással rögzíteni tudják. A fák vastagodása, közvetve a magassági változása is, az évről évre egymásra épülő palástokból évtizedekre visszamenőleg megállapítható. Az évszakonkénti szakaszos működés jól látszik az évgűrűs szerkezetben. A hazai éghajlaton a fatestet létrehozó kambium nem működik egyenletesen. Tavasszal tág üregű elemeket hoz létre, később egyre szűkebb üregűeket, ősz felé már inkább csak vastagfalú, szűk üregű rostokat, míg télen egészen beszünteti működését. A fatestnek egy év alatt történt gyarapodását könnyen meg lehet állapítani, mert az évenként keletkező évgűrűk között ott, ahol az előző év szűküregű

elemei és a következő év tágüregű elemei érintkeznek, éles határvonal, (évgyűrűhatár) látszik. A fatest éves gyarapodása tehát két részből áll: a tavasszal és nyáron létrehozott elsősorban szállító elemeket tartalmazó részből/ korai pászta/ és az zömében ősszel keletkezett vastagabb falú szilárdító rostokból/ késői pászta/. A két rész határvonala az évgyűrű (lásd 6.ábra).



6.ábra A faévgyűrű kialakulásának szemléltetése egy fa keresztmetszetén (forrás: saját)

A fák ezen szerkezeti tulajdonsága teszi lehetővé adott évek radiokarbon koncentrációjának meghatározását, mivel az évgyűrűk könnyen elkülöníthetők, a gyűrűt alkotó anyagok többsége pedig az évgyűrű kialakulása idején jön létre, úgymond konzerválva azokat. Szintén fontos tényező hogy az évgyűrűk egyes elemeiről tudjuk, hogy csak a gyűrű formálódásának évében szintetizálódtak. Ezen alkotóelemek széntartalma a légköri szén fajlagos radiokarbon aktivitását tükrözi.

A radiokarbon kormeghatározás kalibrációjának alapja is éppen az, hogy idős fák évgyűrűi alapján rekonstruálni tudták több mint 10 ezer évre visszamenően a légköri/biológiai szén ^{14}C tartalmának változását. [3,13,19]

2.5 A Püspökszilágyi RHFT bemutatása

A környezet, illetve az emberi egészség védelme érdekében fontos a hazánkban keletkező radioaktív hulladékok biztonságos elhelyezése. A Püspökszilágyi Radioaktív Hulladék Feldolgozó és Tároló 1976-ban készült el, Püspökszilágy és Kisnémedi határában (lásd 7.ábra). A Nemzetközi Atomenergia Ügynökség elveit követve pozitív domborzati formán épült meg.



7.ábra A Püspökszilágyi RHFT elhelyezkedése (forrás: Google earth)

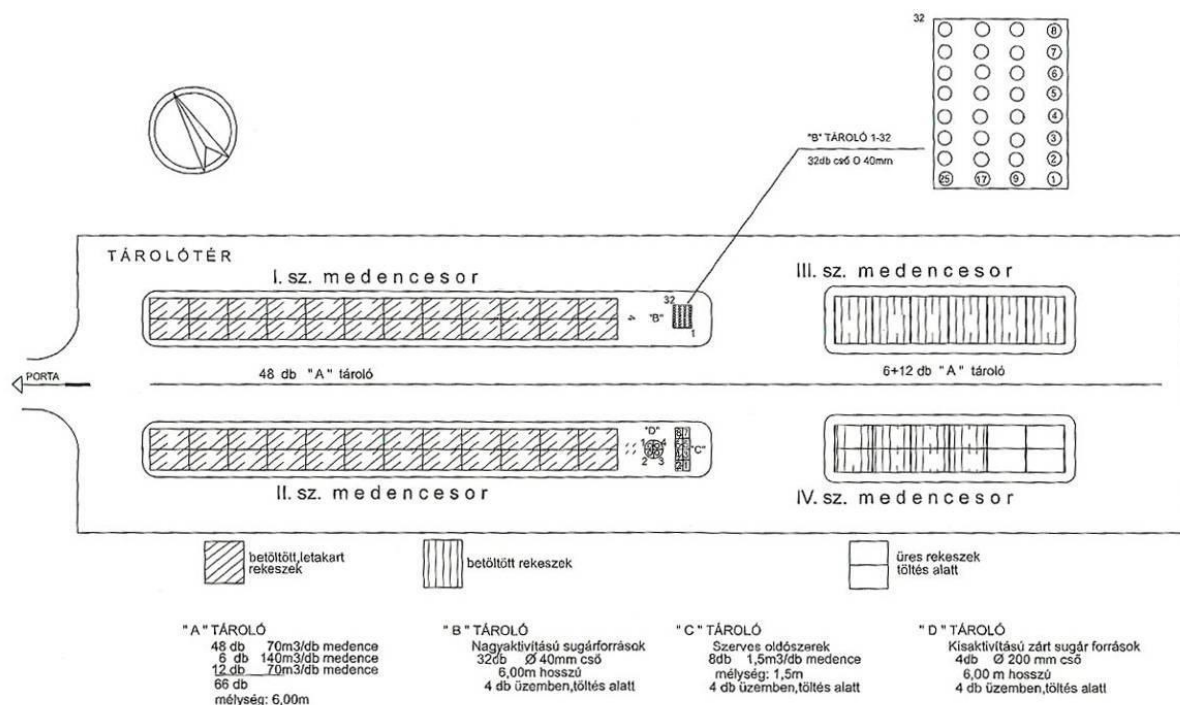
A NAÜ 1965-ben kiadott *Safety Series No.15. Radioactive waste disposal into the ground* dokumentum szolgált biztonsági útmutatóként. Nagy hangsúlyt fektettek a lerakott hulladék környezetében lévő talajok jó izotópmegkötő képességére, a csapadékvíz elvezetésére. Az ajánlásnak megfelelően földmedrű elhelyezést valósítottak meg. A geológiai környezetet tekintve agyagos befogadó közettest található a területen, amely

biztosítja a megfelelő vízzáróságot, valamint kielégíti az izotópmegkötő képességgel szemben támasztott elvárásokat.

Az RHFT kutatási, gyógyászati, ipari és mezőgazdasági tevékenységekből származó radioaktív hulladékok elhelyezésére szolgál. A telephely az alábbi radioaktív hulladékok elhelyezéséről gondoskodik:

- Kis- és közepes aktivitású szilárd hulladékok
- Nagy aktivitású, szilárd hulladékok (zárt sugárforrások)
- Radioaktív szennyvizek
- Egyéb folyékony hulladékok (szerves oldószer, olajos hulladékok)
- Biológiai radioaktív hulladékok

A telep belső elrendezése: három egymás alatti szinten vannak különböző létesítmények. Az intaktív épület a telep bejárata mellett helyezkedik el, ez alatt található a technológiai épület és a garázs. A radioaktív hulladékok tárolói a garáztól kb. 100 m-re helyezkednek el. A végleges tárolóterek az aktív épülettől 150 m-re vannak. A tárolóhelyek két lépcsőben épültek meg (lásd 8.ábra). A telephelyen a nagyobb méretű hulladékcsomagok elhelyezésére szekcionált vasbeton tárolómedencék lettek kiépítve, míg a kimerült zárt sugárforrások lerakására csökutak szolgálnak. Az „A” és „C” típusú tárolók földbe süllyesztett vasbeton medencékből, míg a „B” és „D” típusú tárolók saválló acélból és szénacélból készült csövekből állnak. Az 66 db „A” típusú medence szilárd hulladékok, beágyazott sugárforrások, feldolgozott biológiai hulladékok és radioaktív szennyvizek elhelyezésére alkalmas. A „B” típusú csökutakban zárt sugárforrások vannak elhelyezve, ebből 32 db van. A „C” típusú tárolók a szerves oldószerek szegregált elhelyezését szolgáló külön kisméretű vasbeton cellák. A további 4 db „D” típusú csökut pedig szintén zárt sugárforrások lerakására szolgál. Mindegyik tárolószerkezetnél nagy hangsúlyt fektettek a külső és belső vízszigetelés megoldására. A lerakó területét pedig részben egy elkerített védőzónával vették körül.



8.ábra A tárolótér elrendezése (forrás:[21])

A tároló medencék 2005-ben megteltek, az újabb hulladékszállítmányok fogadásához jelenleg már az üzemi épület pincésintjén kialakított átmeneti tárolóteret használják. A magyarországi intézményekben, a jövőben keletkező hulladékok elhelyezése továbbra is szükséges, ezért meg kell teremteni a térfogatbővítés lehetőségét, ezért 2007-2009 között négy, az 1980-as években lezárt tárolómedence felnyitásával, több mint 200 m³ hulladék kiemelése történt meg. A szétválogatás után a válogatott hulladék stabilizálásával és átsomagolásával a kiemelt idősebb hulladék is a mai követelményeknek megfelelő fizikai-kémiai formába került. A tömöríthető hulladék préselésével pedig az elhelyezendő hulladékmennyiség kevesebb lett. [20,21]

2.5.1 A Püspökszilágyi RHFT környezeti monitoringja

Az RHFT környezetvédelmi szempontból saját megfigyelő rendszert hozott létre, melynek célja hogy a telephelyen végzett radioaktív hulladék kezelés és tárolás környezeti hatásait, illetve a munkavégzés közben keletkezett esetleges szennyeződések időben feltárja. Az ehhez szükséges mintavételezés a telephely teljes területét, felszíni vízfolyások esetében pedig 20 km-es körzetet érinti. A püspökszilágyi RHFT környezeti kibocsátásait és környezetellenőrzésének rendszerét a hivatalos üzemviteli dokumentumok részeként kiadott, a Közép-Dunavölgyi Környezetvédelmi Természetvédelmi és Vízügyi Felügyelőséghez benyújtott Kibocsátás Ellenőrzési Szabályzat, Környezetellenőrzési Szabályzat, valamint az ÁNTSZ Közép-magyarországi Regionális Intézete által jóváhagyott éves mintavételi program határozza meg. A légnemű kibocsátás ellenőrzését emisszió méréssel, kéménybe telepített mintavevővel végzik. Ezentúl a tárolóterület és az üzemi épület kibocsátását az uralkodó szélirányba (ÉNy) telepített folyamatos üzemű monitorok ellenőrzik. Az RHFT működésbe lépése előtt meghatározták a lerakóhely környezetének leglényegesebb pontjain a működés előtti háttérértékeket, az ún. alapszintet. Ezekhez is viszonyítják az ellenőrző mérések eredményeit.

A környezetellenőrzési tevékenység több laboratórium munkájából tevődik össze. Az alapvető méréseket az RHFT saját környezeti laboratóriuma végzi, a szerződéses partnerek pedig a speciális méréseket, a nehezen detektálható izotópok kimutatását hajtják végre. A környezetellenőrző laboratórium jellemzően 40 különböző mintavételi helyről gyűjt rendszeresen talaj, üledék/iszap, növény, aeroszol, kihullás, állati eredetű, felszíni illetve talajvíz mintákat gamma-spektrometria és összes béta számlálás céljából. Ez éves szinten közel 600 mintát eredményez. A létesítmény környezetében mérhető radiológiai jellemzők országos szintű számítógépes nyilvántartásba kerülnek. A területen mért átlagos dózisteljesítményről pedig az RHFT honlapján bárki szabadon tájékozódhat. [20]

3. Anyag és módszer

Az alábbiakban ismertetném a mintavétel pontos helyszínét, a vizsgálati előkészületeket és a mérési módszereken keresztül bemutatnám a használt berendezéseket.

3.1 Püspökszilágyi fa évgyűrű mintavétele

Vizsgálataim mintaterülete a püspökszilágyi Radioaktív Hulladék Feldolgozó és Tároló létesítmény volt. A tároló 35 éve megbízhatóan és biztonságosan üzemel. 1998. július 1-jéig üzemeltetője az ÁNTSZ Pest megyei Intézete volt, ezt követően az üzemeltetést, a Radioaktív Hulladékokat Kezelő (RHK) Kft. vette át. A legtöbb radioaktív hulladék – az elhasznált zárt sugárforrásokat is ide számítva – az orvosi, ipari és kutatási alkalmazásokból származik. A két leggyakrabban előforduló izotóp, amelyekből jelentős készletek vannak, a ^{60}Co és az ^{192}Ir , amelyeket az orvosi és az ipari radiográfiában használnak. Ezek mellett jelentős ^{14}C és trícium tartalmú hulladék is elhelyezésre került a hulladéklerakóban. A létesítmény tárolási kapacitásának és biztonságának növelése érdekében a korábban elhelyezett hulladékokat 2001-től kitermelik, osztályozzák és visszahelyezik a cellákba.



9.ábra A mintavételezett fák elhelyezkedése (forrás: Google earth)

A mintavételi pontot az egyik ilyen felnyitott cellától 50 m-re az uralkodó szélirányban jelöltük ki (E669789, N264984). A telephelyi minta (T-fa) mellett Kisnémedi irányában a létesítménytől ~3km-re (E667339, N267160) háttér minta (H-fa) vételét is elvégeztük (lásd 9.ábra). A háttérmintavétel célja a telephelytől távolabbi, zavartalan regionális természetes ^{14}C szint megállapítása volt, mely fontos a telephelyi többlet ^{14}C meghatározásához. Mindkét mintavételi területen fiatal ép koronájú nemesnyár (*Populus euramericana*) minták begyűjtése történt. A fákból faévgűrű mintavevő fúró segítségével mintavételi pontonként legalább 3-3db 5mm átmérőjű fűrasmagot vettünk, így a fák továbbra is életben maradtak (lásd 10.ábra). A mintavétel 2013.május.14.-én történt.



10.ábra Faévgűrű mintavétel fúrós technikával, a háttér fából

A mintavételt követően a fúrásból kinyert mintákat laboratóriumban szike segítségével legyalultuk, hogy az egyes évgűrűk tisztán látszódjanak, majd a faévgűrű határok mentén feldaraboltuk. A mintavétellel az 1995 és 2012 közötti időszakot sikerült lefednünk. Az egyes faévgűrűket még nedves állapotban szikével apró darabokra vágtam fel. Az aprított minta jobban átjárható a preparálás során használt vegyszerek számára. Ezt követően a mintákat egy teljes napra 60°C-ra felmelegített szárítószekrényben szárítottuk.

3.2 A fa minta előkészítési módszere

A felaprított homogenizált évgűrűkből cellulóz preparálást végeztem. Az α -cellulózzal ellentétben a fa egyéb szerves anyagai (gyanták, viaszok, lignin...) az anyagcsere során vándorolnak a fa szöveteiben. Az α -cellulóz viszont a keletkezését követően helyben marad, ezért alkalmas a légkör ^{14}C tartalmának rekonstruálására.

Az cellulóz preparálást úgynevezett BABAB módszerrel (base-acid-base-acid-bleaching = lúg-sav-lúg-sav-fehérítés) végeztem Némec et al. (2010) szerint. A módszer lényege hogy különböző vegyszerekkel a fa cellulóz tartalma mellől kioldjuk, illetve elrontsoljuk a különféle alkoholokat, fenolokat és karboxil csoporttal rendelkező szennyezőket. Első lépésként a megszártott mintákat 10ml 4%-os (m/V) NaOH oldattal kezeltem majd egy teljes napra 75°C-os szárítószekrénybe helyeztem. Másnap leöntöttem a lúgos oldatot a mintákról majd háromszor desztillált vízzel semlegesre mostam. Második lépésként 10ml 4%-os (m/V) HCl-et adtam a mintákhoz, majd 1 órán keresztül 75 °C-on tartottam. Az 1

óra elteltével a felülúszót leöntöttem és a mintákat újra semlegesre mostam. Ezt követően 1,5 órás NaOH-os majd egy újabb 1 órás sósavas kezelés következett. Ez után a semlegesre mosott mintákat 10-10ml HCl-al savanyított 5%-os (m/V) NaClO₂ segítségével fehéritettem (lásd 11.ábra). Ebben az állapotban 2 órán át 75°C-os vízbe helyeztem a mintákat, majd 20 percen át ultrahang fürdővel kezeltem. A kezelés végén 3x-os desztillált vizes öblítést alkalmaztam. Hagyva a desztillált vizet hogy ellepje a mintákat, további ultrahang fürdőt alkalmaztam a homogenitás érdekében, így a kapott cellulóz finomabbá, egybefüggővé vált.



11.ábra A fa minta, fehérités előtt és után (forrás: saját)

Az így előállt mintákat 75°C-on 72 órán keresztül beszárítottam. A kiszárított tiszta α -cellulóz mintákból analitikai mérleggel körülbelül 5-5 mg-ot mértem be az AMS feltáráshoz használatos kvarc égetőcsövekbe, majd 200-200mg CuO granulátumot mértem hozzájuk, amely az égetés során a cellulóz elégetéséhez szükséges oxigént biztosítja. [12,22-24]

3.3 Minták égetése AMS feltáró rendszeren, grafit céltárgy előállítása

A minták égetése kis mennyiségű minták feltáráására alkalmas AMS feltáró rendszeren történt (lásd 12.ábra). A feltárási elve, hogy az elégetett mintából keletkező égési gázokból

kriotechnikai úton elválasztjuk és kinyerjük a tiszta CO₂-ot. A feltárás 10⁻⁵ mbar-os vákuumban zajlik. A megfelelő vákuumot egy Varian SH-110 Scroll szivattyúval kapcsolt szintén Varian Navigator TV-301 turbomolekuláris szivattyú biztosítja. A nyomásméréshez Edwards WRG kombinált vákuummérő-fejet és Edwards analóg kijelzőt alkalmaznak. A rendszerre csatlakoztatni kell a kvarccsőbe bemért mintát.



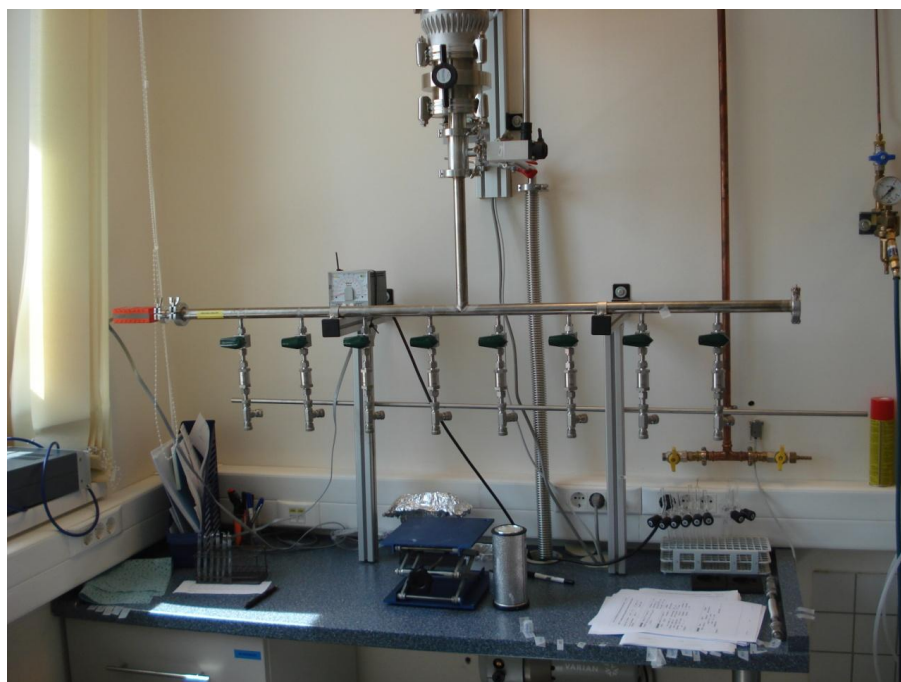
12.ábra Minta feltáró rendszer (forrás: saját)

A feltárás a cellulóz minta elégetésével indul, amit egy speciális csőkemencével végzünk. A minták égetése 1000°C-on 10 percig zajlik. Az égés során keletkező égési gázokat úgy vezetjük át a vákuumrendszeren, hogy az egy vízcsapdán halad át (lásd 13.ábra). Ez a csapda a számunkra felesleges vizet -78°C hőmérsékletű szárazjég és izopropil-alkohol elegybe merülve kifagyasztja. Ezt követően a CO₂ egy másik csapdán, -196°C-os folyékony nitrogén jelenlétében fagy ki. Ekkor elszívjuk azokat a gázokat amelyek nem fagynak ki a folyékony nitrogén hőmérsékletén (N₂, O₂). A nitrogénes csapdában kifagyott gázokat (CO₂, NO_x, SO₂,...) ezt követően egy elemi ezüst és réz töltetű katalizátor kemencén engedjük keresztül, ahol a nitrogén és kén oxidoktól szabadulunk meg.



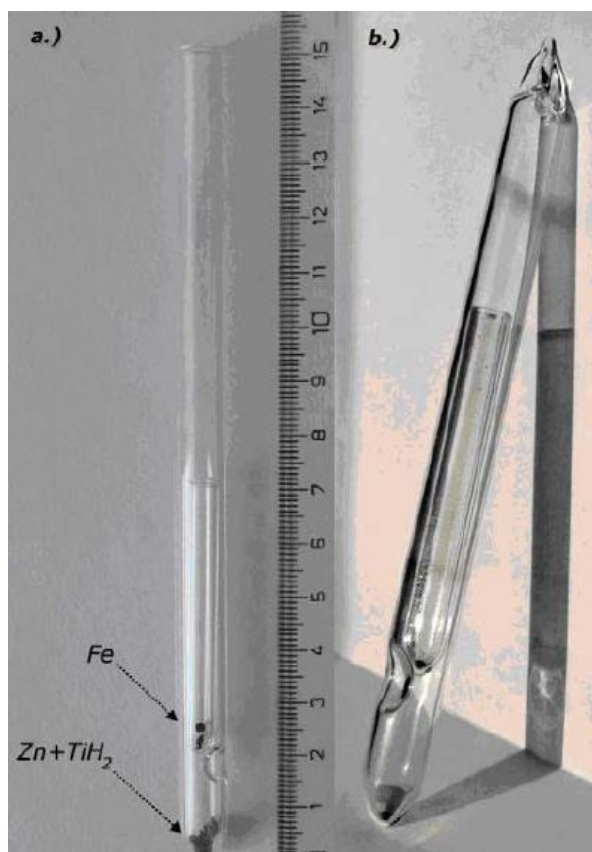
13.ábra Az égetéshez használt kemence (balra), és a feltárás közben használt vízcsapda (jobbra) (forrás: saját)

A feltáró rendszer utolsó szakasza egy két részre osztható ismert térfogatból ($V_{A+B} = 76,44 \text{ cm}^3$) és pontos nyomásmérőből áll. A megtisztított CO_2 gázt ebbe a térbe terjesztettem ki. A kiterjesztett CO_2 mennyisége a nyomás ismeretében kiszámolható.



14.ábra Zártcsöves grafitizáló rendszer (forrás: saját)

A feltárásból kapott mintagázt tartalmazó ampullákat egy zártcsöves grafitizáló rendszeren (lásd 14.ábra) grafitizáltuk. A kémcső aljában az előre bemért TiH_2 (10 mg) és Zn (60 mg) van, melyek reagensként szolgálnak. Ugyancsak ebben a kémcsőben található még egy vasport tartalmazó kis kémcső, ezt a nagy kémcső aljától kb. 2 cm-re található bemélyedés tartja meg (lásd 15.ábra). A kis csőben a vaspor (4,5 mg) katalizátorként van jelen, ennek felületén kötődik meg a szén a grafitizáció során.



15.ábra Balra a „zártcsöves” grafitizáláshoz felhasznált üveg kémcsövek a reagensekkel még nyitott állapotban a CO_2 befagyasztása előtt (a.) és jobbra a már leforrasztott üveg reakciócella grafitizálásra készen (b.) (forrás : ATOMKI HEKAL)

A vasport, cinket és titán-hidridet tartalmazó kémcső a reakciótér, ebbe fagyasztjuk be az 1 mg széntartalomnak megfelelő mennyiségű CO_2 gázt folyékony nitrogénnel, majd kb. $2 \cdot 10^{-6}$ mbar vákuum alatt szűrőlánggal leforrasztjuk ezt az üvegcsövet (lásd 16.ábra).



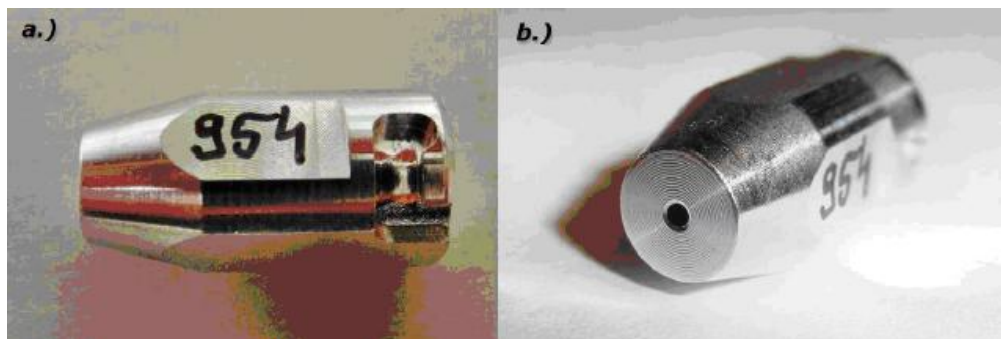
16.ábra A reakciócső leszűrése lánggal (forrás : ATOMKI HEKAL)

A forrasztással lezárt reakciócellákat ezután kemencében 500°C-on tartjuk 3 órán keresztül a hidrogén gáz felszabadításához a titán-hidridből, majd 550°C-on 4 órán keresztül a grafitizáció lezajlásához.



17.ábra Target préselő szerkezet (forrás: ATOMKI HEKAL)

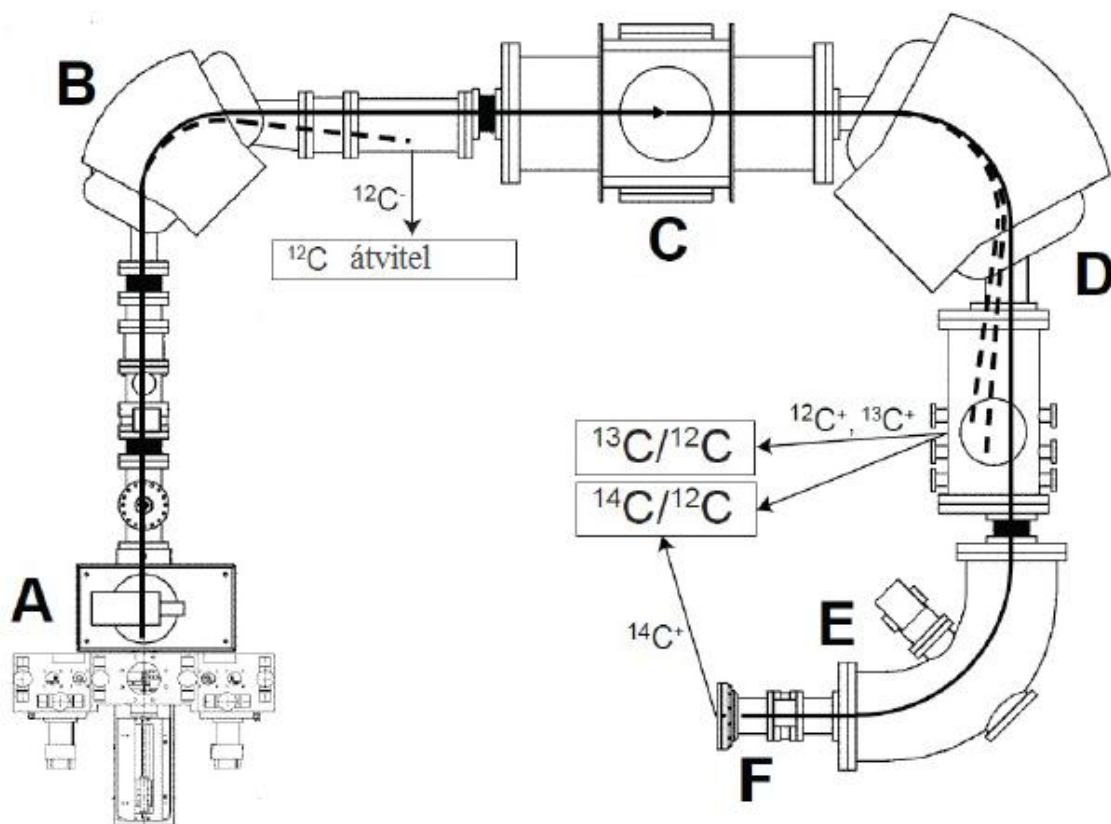
A 17.ábrán látható target megtöltése egy erre a célra alkalmas tartóban történik. Az elkészült grafitot átöntjük az előzőleg feltört kémcsőből a targetbe. Ezután a target- tartót pneumatikus prés alá helyezzük és bepréseljük a mintát (lásd 18.ábra). A mintát tartalmazó targetet Eppendorf tartóba tesszük, lezárjuk, és így tároljuk a mérésig. [1]



18.ábra Alumínium target-tartó (a.) az 1mm-es homlokfuratába bepréselt grafit mintával (b.) (forrás : ATOMKI HEKAL)

3.5 ^{14}C mérése AMS mérőkészülékkel

A **MI**ni radio**CA**rbon **DA**ting System (MICADAS) gyorsító tömegspektrométer koncepcióját a svájci Paul Scherrer Institute és ETH Zürich kutatóintézet dolgozta ki. A berendezés 1+ töltésű ionnyalábot hoz létre a gyorsító szakaszban a negatív szénionokból, és a többszörös molekula-ütköztetési módszert kihasználva csökkenti az interferáló molekulaionok mennyiségét a ^{14}C analízisre használt nyalábban. A MICADAS AMS a ^{14}C mérés mellett a radiokarbon kor korrekciójához elengedhetetlen $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ arányt is egyidejűleg képes mérni a mintából, ami más AMS-ek esetén a napi gyakorlatban sokszor nem megoldható és csak nehezen, részben pótolható. A rendszer elvi felépítése a 19.ábrán látható.



19.ábra A MICADAS ^{14}C AMS rendszer elrendezése és részei. A: ionforrás; B: kisenergiás tömegspektrométer; C: gyorsító; D: nagyenergiás tömegspektrométer; E: elektrosztatikus tér analízátor; F: gázionizációs ^{14}C detektor (forrás:[25])

A berendezésben egy vákuum izolált gyorsító üzemel a korábbiaknál jóval alacsonyabb terminálfeszültségen (200 kV). Az ionforrás kialakításánál fő szempont volt, hogy a forrást befogadó kamra földpotenciálon legyen, azaz működő AMS esetén is könnyen kezelhető maradjon. Ennek érdekében az ionforrás minden nagyfeszültségű bevezetése egy földpotenciálon lévő vákuumkamrába alulról lett megoldva, izoláltan. A nagyfeszültségű tápegységek az ionforrás tartóvázának alsó részében lettek elhelyezve, egy Faraday-kalitkával védett térrészben. Ez a kialakítás 40 keV-os kivonási energia elérését teszi lehetővé a C- ionok számára. A Cs-tartály az ionforrás kamrában kapott helyet. A tipikus C- ionáram 30-50 μA közötti érték.

A laboratóriumok vagy közvetlenül az NBS oxálsav standardra vonatkoztatva adják meg az eredményeiket, vagy egy olyan másodlagos standardra vonatkoztatva, amelyet az NBS standarddal hitelesítettek. A nemzetközileg elfogadott referencia érték a radiokarbon koradatokhoz az NBS oxálsav. Az oxálsav ^{14}C aktivitása időben változik, a fenti definícióval megadott nemzetközi standard aktivitás változatlan.

Az oxálsav mellett 3 blank, vagyis fosszilis eredetű öreg (radioaktív szén nem vagy alig tartalmazó) CO_2 is mérésre kerül. Ezzel a mérés pontossága, a módszer és a berendezés hatékonysága ellenőrizhető és mutatható ki.

Az AMS berendezés mérési pontossága nemzetközi referenciaanyagokon keresztül tesztelhető. Ilyen referenciaanyagok az IAEA anyagok. Ezek ^{14}C aktivitása jól ismert érték, mely rögzítve van, így ellenőrizhető a mérés és a berendezés pontossága.

Az alábbi 20.ábrán az AMS készülék látható. [1,2]



20.ábra MICADAS típusú gyorsító tömegspektrométer (AMS) (forrás:HEKAL)

3.6 A mért ^{14}C eredmények megadásának módja

A légkör ^{14}C koncentrációja az 50-es 60-as években a nukleáris fegyverkísérletek hatására a korábbi érték kétszeresére növekedett. A természetes háttérszint definiálása érdekében ezért bevezettek egy úgynevezett természetes radiokarbon szintű jelenkori szén („Modern Carbon”) referencia értéket. A konvenció szerint egy 1950-ben az atombomba kísérleteket megelőző időszakban a légkörrel egyensúlyban keletkezett fa évgyűrűinek ^{14}C tartalma 100 pMC (modern szén százalék). Amely elemi szénre vonatkoztatva fajlagosan $A_{\text{abs}} = 0,226 \text{ Bq/kg}$ ^{14}C aktivitásnak felel meg. A radiokarbon mérések során a mérési eredményeket (A_{SN}) általában ehhez a referencia szinthez viszonyítva és 1950-re normálva adják meg. Számunkra viszont a faévgyűrűk keletkezésekor jellemző aktivitás meghatározása az érdekes ebben a munkában. Ennek érdekében a ^{14}C bomlással korrigálnunk kell a kapott eredményeket, hogy ne 1950-re hanem a formálódás évére vonatkozó szinteket vizsgálhassuk. Az így kapott érték eltérését a konvenció szerinti referencia szinthez (1950-ben formálódott faévgyűrűk ^{14}C tartalma) képest ezrelékben fejezzük ki az alábbi módon:

$$\Delta = \left(\frac{A_{\text{SN}} e^{\lambda_c t} - 1}{A_{\text{ABS}}} \right) \cdot 1000\text{‰}$$

Ahol Δ : a minta képződési évére korrigált ^{14}C aktivitás A_{SN} : a minta mérés kori fajlagos aktivitása, t : a faévgyűrű formálódása és a ^{14}C mérés között eltelt idő években, A_{ABS} : a referencia anyag abszolút aktivitása 1950-ben. [26]

4. Eredmények

4.1 Kémiai kitermelés

Az alábbi 2.táblázatban szereplő adatok a fa évgyűrű minták feldolgozását, előkészítését, valamint a feltárását dokumentálják.

2.táblázat A kémiai kitermelés eredményei, ahol T =RHFT telephelyi fa minta, és H =háttér fa minta

Minta sorszáma	Kinyert cellulóz hozam (%)	Elégetett cellulóz mennyiség (mg)	Összes nyert C (mg)	Kinyert C hozam (%)
T/1995	31,2	5,83	1,38	23,7
T/1996	28,0	5,88	1,52	25,9
T/1997	31,4	5,38	1,35	25,1
T/1998	28,1	5,85	1,52	26,0
T/1999	26,7	5,77	1,45	25,2
T/2000	32,2	5,53	1,50	27,1
T/2001	34,6	5,86	1,49	25,5
T/2002	34,1	5,97	1,58	26,4
T/2003	26,7	5,87	1,52	25,9
T/2004	28,6	5,62	1,44	25,5
T/2005	31,1	5,85	1,47	26,8
T/2006	34,3	5,74	1,51	26,3
T/2007	31,8	5,76	1,53	26,5
T/2008	33,1	5,80	1,48	25,5
T/2009	34,4	5,70	1,52	26,7
T/2010	29,4	5,55	1,40	25,3
T/2011	29,5	5,90	1,48	25,1
T/2012	30,8	5,51	1,41	25,6
H/1995	27,8	5,10	1,58	31,0
H/1996	25,6	5,62	1,55	27,6
H/1997	21,2	5,22	1,33	25,5
H/1998	25,1	5,24	1,50	28,7
H/1999	20,9	6,00	1,77	29,4
H/2000	24,1	5,55	1,22	22,0
H/2001	21,1	5,23	1,13	21,7
H/2002	16,9	5,99	1,51	25,2
H/2003	25,0	5,35	1,19	22,3

H/2004	19,6	5,48	1,51	27,6
H/2005	27,8	5,86	1,42	24,2
H/2006	28,5	5,27	1,30	24,7
H/2007	32,6	5,70	1,15	20,2
H/2008	33,7	5,36	1,39	25,9
H/2009	32,4	5,71	1,48	25,9
H/2010	33,3	5,86	1,38	23,6
H/2011	33,0	5,95	1,32	22,2
H/2012	34,0	5,69	1,34	23,5
C9 a	36,5	5,21	1,45	28,0
C9 b	36,5	5,66	1,43	25,2
C9 c	36,5	5,41	1,56	29,0
C9 d	36,5	5,83	1,60	27,4
C9 e	36,5	5,62	1,60	28,5
C3 a	-	5,46	1,70	31,2
C3 b	-	5,62	1,58	28,2
C3 c	-	5,78	1,78	30,8
Átlag	29,1	5,64	1,46	26,98
Szórás	4,8	0,24	0,14	2,41

A méréshez használtunk az International Atomic Energy Agency (IAEA) által forgalmazott nemzetközi referencia anyagokat is, melyeknek ^{13}C és ^{14}C koncentrációja ismert, így a preparálás és a mérés minősége ellenőrizhető, az előforduló hibák általuk észlelhetőek. Az IAEA-C3 egy 1989-ben preparált cellulóz anyag 40 éves fákból, melynek ^{14}C aktivitása 129,41 pMC. Szintén az IAEA referencia anyaga a C9-es új-zélandi kauri fa minta, mely idős korából adódóan rendkívül alacsony ^{14}C aktivitással rendelkezik (0,2-0,3 pMC).

Mivel a C3 cellulóz, így annak a kinyert cellulóz hozama ismeretlen. Az összes többi minta esetében ez a szám a kinyert cellulóz tömege és az eredeti fa (preparálás előtt bemért) tömegének hányadosa, szorozva 100-al. Ez átlagosan 29,1%-os hozamot jelentett.

Az összes nyert szén az a mg-ban kifejezett C mennyiség, amelyet az égetés során nyerünk ki a cellulózból.

A cellulóz széntartalma 44%. Így az égetés során kinyert szén hozam átlagosan 60% volt. A keletkezett szénmennyiség minden esetben elegendő volt grafit céltárgy készítéséhez.

4.2 A háttér fa évgűrűinek ^{14}C tartalma

A légkör ^{14}C tartalmát tudományos célból folyamatosan nyomon követik. A Svájci Alpokban a Jungfraujoch (3471 m a.b.s.l.) hegycsúcs tetején havi rendszerességgel gyűjtenek levegőmintákat ^{14}C koncentráció mérésre. Továbbá a Paksi Atomerőmű közelében a mostanihoz hasonló vizsgálatok céljából kijelölt háttér fa (Dunaföldvár közelében nőtt erdei fenyő) évgűrűiből mért ^{14}C eredmények is rendelkezésre állnak. A Kisémeditől É-ra kiválasztott háttér fa (H-fa) eredményeit a Jungfraujoch-i levegő (JFJ-levegő) és a Dunaföldvári háttér fa (B24-fa) eredményeivel vetettük össze annak megállapítására, hogy valóban tekinthetjük e a H-fát az RHFT-től háborítatlan mintának. A két háttér fa (B24 és H) évgűrű sorozatok ^{14}C eredményeit közvetlenül összehasonlíthatjuk. Az alpesi levegő eredményei esetében azonban figyelembe kell vennünk a mintául szolgáló fafaj vegetációs időszakát is. A légköri adatok közül az április és szeptember közötti havi értékek számtani átlagát képeztük az adott évekre. Az ily módon összevethető háttér értékeket a 3.táblázat tartalmazza.

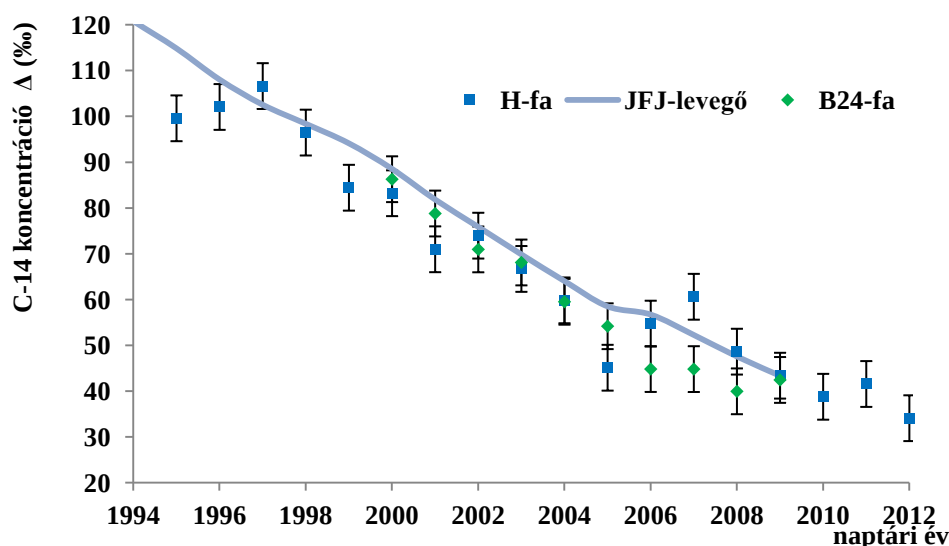
3.táblázat Az RHFT közelében kiválasztott háttér fa (H-fa) eredményeinek összehasonlítása a dunaföldvár közelében kijelölt háttért fa (B24-fa) és az alpesi hegyi (JFJ) levegő ^{14}C adataival.

Évgűrű keletkezési éve	RHFT közeli háttér fa ^{14}C szintje $\Delta_{\text{H-fa}} (\pm 5\%)$	Dunaföldvári háttér fa ^{14}C eltérése $\Delta_{\text{H-fa}} - \Delta_{\text{B24-fa}} (\%)$	Alpesi hegyi levegő ^{14}C eltérése $\Delta_{\text{H-fa}} - \Delta_{\text{JFJ-levegő}} (\%)$
1995	100	n.a.	-15
1996	102	n.a.	-6
1997	107	n.a.	4
1998	96	n.a.	-2
1999	84	n.a.	-10
2000	83	-3	-5
2001	71	-8	-11
2002	74	3	-2
2003	67	-1	-3
2004	60	0	-4
2005	45	-9	-13
2006	55	10	-2
2007	61	16	8
2008	49	9	1

2009	43	1	0
2010	39	5	0
2011	42	11	7
2012	34	7	3
Átlag	-	3	-3
Szórás	-	7	7

Az adatokból jól látható, hogy nincs lényegi különbség a két magyarországi háttérnek kiválasztott fa évgyűrűinek ^{14}C koncentrációi között. A maximális eltérés a két minta között 2007-ben jelentkezett, amikor a H-fa ^{14}C tartalma 16 ezrelékkal nagyobb volt a B24-fa értékénél, 2004-ben viszont teljesen egyezett a két minta ^{14}C tartalma. A mérés hibája 5‰ ami az egyes évgyűrűk közötti eltérésekkel összemérhető nagyságrendű. Amennyiben az egyes eltérések átlagait vizsgáljuk, akkor nagymértékben ellensúlyozni tudjuk az egyes évek tényleges vagy esetleg a mérési hibából eredő eltéréseit. A vizsgált 10 év-ben átlagosan 3 ezrelékes többletet tapasztaltunk a H-fában melynek szórása $\pm 7\%$. Megállapítható tehát, hogy a két mintaterületen vett minták eredményei hibán belül egyeznek egymással. Mivel a fák a légkörből felvett CO_2 -ból építik fel a szerves anyagaikat a JFJ adataival is összevethetjük az eredményeket. A H-fa évgyűrűinek és a JFJ-levegő áprilistól szeptemberig vett éves átlagainak különbsége hasonlóan jó egyezést mutat az egyes években. A legnagyobb eltérés itt -15‰ a JFJ levegő ^{14}C tartalmához képest. A legjobb egyezés 2009 és 2010-ben volt. Ekkor az egyes eredmények megegyeztek egymással. Ha 1995 és 2012 közötti időszak átlagait vizsgáljuk, akkor a H-fa évgyűrűinek átlaga 3 ± 7 ezrelékkal kisebb a Jungfraujoch hegycsúcsról származó levegőmintákból mért ^{14}C koncentrációktól. Ez az egyezés önmagában is rendkívül jónak tekinthető. Viszont ha figyelembe vesszük, hogy míg a Jungfraujoch hegy csúcsán a mintavételi pont (JFJ) 3471 m magasán a svájci Alpokban található légvonalban 860 km-re a mindössze 226 m magasságban lévő Kisémedi melletti (H-fa) mintavételi ponttól illetve, hogy az első esetben a levegő CO_2 tartalmának ^{14}C koncentrációját mérték egy nemzetközileg elismert heidelbergi ^{14}C laboratóriumban és a H-fából pedig mi a faévgyűrűket mértük, akkor ez az egyezés kiválóan jónak mondható. Ez azt is jelenti, hogy a levegő CO_2 természetes radiokarbon koncentrációját elsősorban a globális vagy legalábbis kontinentális viszonyok határozzák meg.

A légkör ^{14}C koncentrációja a felszíni nukleáris fegyverkísérletek eredményeként az 1960-as évek elejére megduplázódott. Az 1962-es atomcsend egyezményt követően a légköri többlet ^{14}C az óceánokban oldott nagy mennyiségű CO_2 illetve a bioszférával való kicserélődés következtében folyamatosan csökken. A csökkenés mértéke napjainkban évente 5%. A 21.ábrán az atombomba csúcs lecsengése jól látható. Ez a csökkenés a vizsgált faévgűrűkben is jól nyomon követhető. Az eredmények alapján megállapítható, hogy a Püspökszilágyi Radioaktív Hulladék Feldolgozó és Tároló (RHFT) semmilyen hatással nincs a tőle légvonalban 3 km-re kiválasztott háttér fa évgűrűinek ^{14}C tartalmára. [27,28]



21.ábra A légköri ^{14}C koncentráció csökkenésének kimutatása az RHFT közeli háttér fa, a B24 háttér fa, illetve a JFJ-levegő adatain keresztül

4.3 A tároló közeli fa évgűrű ^{14}C tartalma

Azt már láttuk, hogy a RHFT-től ÉNY-ra 3km-re a H-fában nem mutatható ki a tároló jelenléte a nagyérzékenységű ^{14}C vizsgálatok alapján. Kérdés, hogy hogyan jelentkezik ez a tárolócellák közvetlen közelében. A tároló területén a mintavételül szolgáló fa (T-fa) 50 méterre található a jelenleg betárolási szakaszban lévő A65-66-os celláktól. A T-fára kapott eredmények a 4.táblázatban találhatóak. Az eredményekből jól látható, hogy itt már

mérhető a hulladéktároló ^{14}C kibocsátása. A legkisebb mért érték 197‰ volt, amely 112‰-el nagyobb volt a háttér értékéhez képest. A legnagyobb mért érték 1194‰ volt, amely 1134‰-el haladta meg a háttér vonatkozó értékét. A tároló hozzájárulásából származó többlet ^{14}C szint a vizsgált 18 év átlagában 517 ± 321 ‰ volt.

4.táblázat Az RHFT területén vett fa minta adatai, valamint a háttér fához képesti többlet érték

Évgyűrű keletkezési éve	RHFT területén fa $\Delta_{\text{T-fa}} (\pm 10 \text{ ‰})$	Többlet a háttér felett $\Delta_{\text{T-fa}} - \Delta_{\text{H-fa}} (\pm 15 \text{ ‰})$
1995	294	195
1996	253	151
1997	306	199
1998	316	219
1999	197	112
2000	274	191
2001	250	179
2002	811	737
2003	743	676
2004	1008	949
2005	456	411
2006	712	657
2007	1194	1134
2008	812	763
2009	674	631
2010	540	501
2011	723	682
2012	959	925
Átlag	-	517
Szórás	-	321

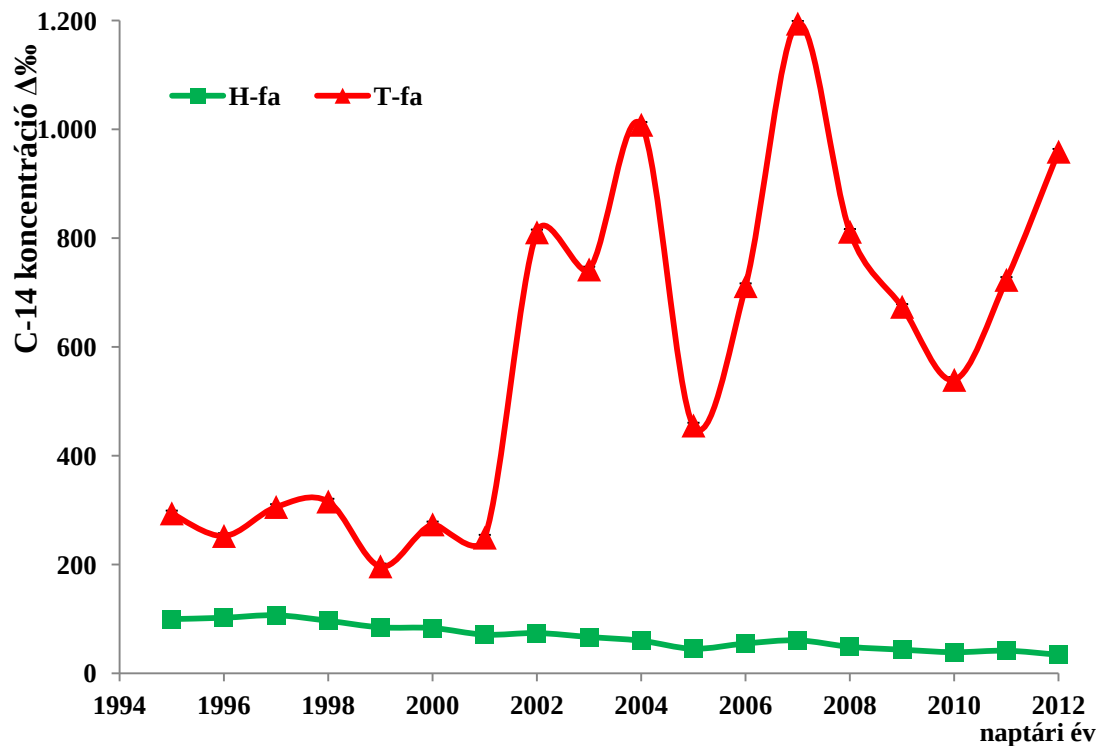
Ha ábrázoljuk a H-fa mérési eredményeit az idő függvényében, akkor képet kaphatunk a tároló kibocsátásának időbeli alakulásáról. A 22.ábrán látható, hogy a H-fa értékeihez képest T-fa adatai igen széles tartományban változnak.

Az első hat évet átfogó 1995-2001 közötti időszakban, a faévgűrűkben jól mérhető átlagosan 178‰-es többlet jelentkezett egy viszonylag kisebb, ± 36 ‰-es szórással. A 2001-et követő időszakban viszont sokkal nagyobb kilengések figyelhetők meg az egyes évek között. Ezért az RHFT munkatársai segítségével a mérési eredményeket megpróbáltuk

társítani az RHFT területén a kérdéses időszakokban végzett olyan speciális munkálatokkal, melyek az egyes évek közötti jelentős ^{14}C ingadozásokat okozhatták.

Az RHFT ún. „C”-típusú tárolóiba 1995-ben jelentős mennyiségű ^{14}C tartalmú szerves oldószereket helyeztek el. A tároló 1995-2001 közötti viszonylag állandó többletkibocsátása összefügghet az elhelyezett hulladékkal, viszont valószínűbb hogy a már korábban elhelyezett hulladékokból származó diffúz kibocsátás hozzájárulása is megjelenik ebben.

2000-2001-ben kezdődött az A65-A66 tárolómedencék feltöltése, melyek ekkor hosszú ideig nyitott állapotban voltak. Így azokból gázformában ^{14}C sokkal könnyebben mobilizálódhat, mint a már véglegesen lezárt, lebetonozott régebbi cellákból. Ezekbe a nyitott cellákba néhány száz liter térfogatú, magas szerves ^{14}C tartalmú folyadék volt ideiglenesen betárolva, kannákba csomagolva. Ezek akár okozhatták a 2001-től induló változó mértékben kiugró ^{14}C koncentrációkat (pl.: 2001-ről 2002-re 250‰-ról 810‰-re) a közeli fa évgyűrűiben. A 2003-as csökkenés, a kiugrás megtörése esetleg tulajdonítható annak, hogy a III-IV-es medencesorokra (és az A65-66 tárolókra) ideiglenesen egy nagy sátor borítás került, az útburkolat felújítása során. A sátortakarás nagyban korlátozhatta a cellákból a szél által kiöblítődő ^{14}C mennyiségét. Ugyanakkor a csökkenés másik összetevője lehet az is, hogy a „C”-tárolóból bő egy köbméter vizet eltávolítottak. A „C” tároló megépítésekor a tároló vízszigetelését úgy ellenőrizték, hogy teletöltötték az 1,5 köbméteres medencéket vízzel. Az egyik medencében ez bennmaradt, mivel hulladékot nem raktak bele. Ebbe aztán beleoldódhatott a többi medencéből diffúzióval kikerülő ^{14}C .



22.ábra A háttér(H) és az RHFT területén lévő(T) fa értékeinek változása az idő függvényében

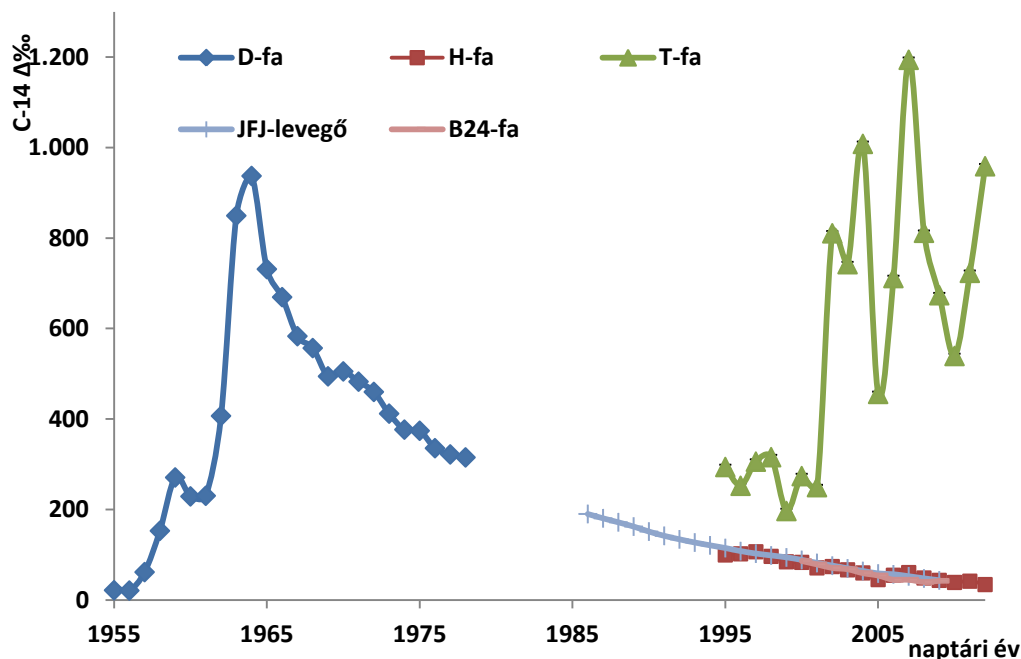
2005-ben a medence bezárása történt, amit jól tükröz a 2005-ös hirtelen csökkenés is.

2007-2009 között egy demonstrációs program keretein belül több régen lezárt medence megnyitása történt a hulladékok újracsoportosítása céljából. A cellák radioaktív hulladék tartalma feldolgozásra került. Ezt jelezheti a 2007-el kezdődő hullám.

2011-ben újra megnyitották az A65-66 medencéket és 2011-2012 során kiemelték az ottani hulladékokat is, feldolgozásra. Ezt jelezheti a 2011-es kiemelkedő ^{14}C -es hullám a fa cellulózában.

4.4 A RHFT területén nőtt fa ^{14}C adatainak összehasonlítása az atombomba csúcs idejéről származó faévgyűrű sorozat eredményeivel

Az eredményeket más forrásokból származó adatokkal is összevetettük. Hertelendi Ede az 1970-es években egy Debrecenben nőtt fa (D-fa) évgyűrűiben kimutatta az 1960-as évek atombomba kísérleteinek hatását. A debreceni fa eredményekből látható, hogy bár a háttérrel jól mérhetően meghaladja a püspökszilágyi tároló területén nőtt fa (T-fa) és persze így a levegő ^{14}C tartalma is, de ez nagyságrendileg nem nagyobb az 1960-as években az egész Földi atmoszférára jellemző ^{14}C aktivitás értékénél (lásd 23.ábra). Ez azt is jelenti, hogy ha bárhol a Földön vennénk faévgyűrű mintát egy olyan fából, ami már az 1960-as években is élt, hasonló eredményeket kapnánk, mint az RHFT területén közvetlenül a cellák 50 méteres szomszédságában az 1995-2012 között nőtt faévgyűrűkben.



23.ábra A ^{14}C szint a debreceni- (D), az RHFT melleti háttér- (H) és az RHFT területén (T) nőtt fákban, az alpesi levegőben (JFJ) és a dunaföldvári háttér fában (B-24) a vizsgált időszakban, a Modern Carbon referencia szinthez képest.

4.5 A tároló területén nőtt fa évgűrűiben mért többlet ^{14}C aktivitás meghatározása és értelmezése

A konvencionálisan elfogadott természetes radiokarbon szint, amit az atombomba csúcs előtt 1950-ben nőtt faévgűrű ^{14}C aktivitásával definiáltak: 226 Bq/kg ^{14}C aktivitás elemi szénre vonatkoztatva. Amennyiben figyelembe vesszük, hogy a fák széntartalma száraz fa esetén a teljes tömeg kb. 49%-a, akkor a háttér és a telephelyi fa fajlagos ^{14}C aktivitása a következő táblázatban látható módon alakul (lásd 5.táblázat). A legkisebb többlet 1999-ben volt, ami mindössze 10% többletet jelentett a háttér értékhez képest. A legnagyobb többlet 107% viszont 2007-ben jelentkezett. Összességében elmondható, hogy az RHFT területén nőtt fák évgűrűinek ^{14}C aktivitása a természetes háttérrel átlagosan 49%-al haladja meg, melyet egy elég jelentős változékonyság (szórás $\pm 31\%$) jellemzett az egyes évek között. [29]

5.táblázat A háttér(A_H) és telephelyi(A_T) fa fajlagos ^{14}C aktivitása

Évgűrű keletkezési éve	A_H (Bq/kg _{szt.}) ($\pm 0,5\%$)	A_T (Bq/kg _{szt.}) ($\pm 0,5\%$)	A_T többlet (%) ($\pm 1\%$)
1995	121	143	18
1996	122	138	14
1997	122	144	18
1998	121	145	20
1999	120	132	10
2000	120	141	18
2001	118	138	17
2002	119	200	69
2003	118	192	63
2004	117	222	90
2005	115	161	39
2006	117	189	62
2007	117	242	107
2008	116	200	73
2009	115	185	60
2010	115	170	48
2011	115	190	65
2012	114	216	89
Átlag	-	-	49
Szórás	-	-	31

5. Összefoglalás

Munkám célja a Püspökszilágyi Radioaktív Hulladék Feldolgozó és Tároló légköri ^{14}C kibocsátásának kimutatása volt egy közeli fából vett minta segítségével. Az összehasonlítás érdekében ugyancsak mintát vettem egy 3 km-rel távolabb nőtt ugyanolyan fajú fából, a háttérszint megállapításához.

A mintavétel majd a preparálás is az általam tanulmányozott korábbi fa évgűrű vizsgálati dokumentumoknak megfelelően történt. A korszerű és megbízható módszereknek köszönhetően minőségileg jól ellenőrzött, reprezentatív eredményeket kaptam. Ugyancsak ezt támogatta az IAEA nemzetközi ^{14}C referencia anyagának használata, együtt preparálása és mérése a mintáimmal.

A háttér fa minta hitelesítés céljából összevetésre került egy hasonló vizsgálatban használt dunaföldvári háttér fa, valamint a Jungfrauoch hegycsúcson vett levegőminták ^{14}C szintjével. A kapott adatok egyértelműen azt mutatták, hogy lényegi eltérés a két háttér fa (az RHFT-től 3 km-re kiválasztott és a dunaföldvári) ^{14}C koncentrációjában nem mutatkozott. Ennek tudatában kijelenthetjük, hogy a Kisnémedi közelében levő „háttér” fára már semmilyen hatással nincs az RHFT ^{14}C kibocsátása! A választott háttér fa hitelesen használható volt természetes referenciaszintnek.

Az alpesi (jungfrauochi) levegőmintákkal összevetve pedig szintén elhanyagolható az eltérés a két háttér fa évgűrűiben, ami figyelemre méltó egyezés a távolság és a tengerszint feletti magasságbeli eltérés ellenére. Ez pedig azt mutatja, hogy az egyes évgűrűk természetes ^{14}C tartalma szoros összefüggést mutat az azonos évben a légkörben jelenlévő ^{14}C koncentrációval.

Ugyancsak ezen adatok összehasonlítása eredményeként látható miként csökken folyamatosan a légköri ^{14}C koncentráció az 1962-es atomcsend egyezményt követően.

A radioaktív hulladék tároló területéről vett fa évgűrűiben viszont már jól látható a ^{14}C többlet, a háttér fa értékeihez képest, jelentős kiugrások mutatkoznak. Az első időszakra (1995-2000) vonatkozóan a „C” típusú tárolóban elhelyezett oldószerek, valamint a

korábban lerakott hulladékokból származó diffúz kibocsátás adja a viszonylag kisebb 178‰-es többletet.

2000-2001-ben megkezdődött az A65-66 tárolómedencék feltöltése, ahonnan leginkább gázformában került kibocsátásra ^{14}C . Ez okozhatta a 2002-re 810‰-es koncentráció növekedést. 2003-ban az ideiglenes sátor borítás valószínűleg ezt a gázkibocsátást akadályozta meg, amely az értékek visszaesésében mutatkozik meg, valamint a „C” tárolóból eltávolított szennyezett víz is ehhez a csökkenéshez járult hozzá.

Újabb növekedés 2007-ben volt, amikor is több medencét megnyitottak a hulladékok újracsoportosítása céljából.

A legutolsó hullám a 2011-ben újra megnyitott A65-66 medencéknek tudható be. 2011 és 2012 között kiemelték a medencékben levő hulladékokat, feldolgozás céljából.

Az általam vizsgált fa évgyűrűk adatait azért találtam fontosnak összevetni egy atombomba csúcs idejéből származó fa értékeivel, hogy ezáltal látható legyen, hogy nagyságrendileg az RHFT területén mért többlet ^{14}C mennyiség a fa évgyűrűiben nem sokban különbözik az 1960-as években az egész Földi atmoszférára jellemző ^{14}C értékétől. Tehát ez semmiféle aggodalmat nem kelthet a környékbeliekben, főként számításba véve, hogy a Kinémedi háttér fában már a legérzékenyebb mérési módszerekkel sem mutatható ki a telephelyről származó ^{14}C többlet, sőt döbbenetesen jó egyezést mutat szénizotóp összetétele a svájci Alpokban gyűjtött levegőjével.

Végül a telephely területén nőtt fa többlet ^{14}C aktivitásának meghatározásaként megállapítható, hogy a fa évgyűrűinek aktivitása a természetes háttérrel 49%-al haladja meg melyet egy elég jelentős változékonyság (szórás $\pm 31\%$) jellemzett az egyes évek között.

Felhasznált irodalom

- [1] Molnár Mihály- Rinyu László- Janovics Róbert- Major István- Veres Mihály : Az új debreceni C-14 AMS laboratórium bemutatása. In: Archeometriai Műhely 2012/3. p 147-160
- [2] Molnár Mihály- Hertelendi Ede- Veres Mihály- Radiokarbon: Alkalmazások és perspektívák a környezetvédelemben és az iparban. Magyar Tudomány, Magyar Tudományos Akadémia folyóirata. 2012. 173. évf. 2. szám p 152-161
- [3] Molnár Mihály: A szén és a idő: Radiokarbon kormeghatározás. In: Fizikai Szemle Magyar Fizikai Folyóirat 2006. június 56. évfolyam 6. szám p 181-184
- [4] Molnár M.: A radiokarbon ezer arca. In: Természet Világa 2012 143.évf. 5. szám p 236-237
- [5] Hertelendi Ede: Radiokarbon kormeghatározás. MTA Atommagkutató Intézet, Debrecen 1997.
- [6] Dr. Barótfi István: Környezettechnika, Mezőgazda Kiadó, Budapest 2000.
- [7] Libby W. F.- Anderson E. C.- Arnold J.R.: Age Determination by Radiocarbon Content: World-Wide Assay of Natural Radiocarbon. In: Science 1949 109, p 227-8
- [8] Meleg Sándor: A ^{14}C , avagy a radiokarbon módszer buktatói.
- [9] Pongrácz Anita : Radioaktív hulladékok tárolása.
- [10] Molnár M.: Kis és közepes aktivitású radioaktív hulladék-tárolók gázterének vizsgálata. Doktori (PhD) értekezés. Témavezető: Kiss Á.Z. (in Hung.) Debrecen, Debreceni Egyetem (2003) p 1-98.
- [11] Somlai János: Atomerőművek környezeti hatásai, Radioaktív kibocsátások
- [12] Hertelendi Ede- Csongor Éva (1982): Anthropogenic ^{14}C Excess in the Troposphere between 1951 and 1978 Measured in Tree Rings. Radiochemical and Radio-analytical Letters. 56, 103.
- [13] Hertelendi Ede: Légköri atomfegyver kísérletek által termelt radiokarbon beépülése fák évgűrűibe. Doktori értekezés. Témavezető: Dr. Csongor Éva. Debrecen, MTA Atommagkutató Intézete, 1980.

- [14] Körneyi József- Mikecz Pál: Radiokémia a gyógyítás szolgálatában. In: Magyar Tudomány, Magyar Tudományos Akadémia folyóirata 2012. 173 évf. 2. szám p 141-145
- [15] Molnár Mihály: Recent results and future potencial of AMS C-14 technique in drug development and testing.
- [16] Láng Ferenc: Növényélettan A növényi anyagcsere élettana, ELTE Eötvös kiadó, Budapest, 1998.
- [17] Dr.Sárdi Katalin: Agrokémia és a növénytáplálás alapjai
- [18] Vass Imre: A fotoszintézis molekuláris biofizikája, 2000.
- [19] Majer Antal: Évgyűrű kronológia. In: Az Erdő 1972. 21. Évf. 4.sz. p 164-171
- [20] <http://www.rhk.hu/letesitmenyeink/rhft/> Letöltve: 2013.11.09.
- [21] Schweitzer Ferenc- Tiner Tibor- Bérci Károly: A Püspökszilági RHFT Környezet- és sugárbiztonsága. MTA Földrajztudományi Kutatóintézet, Budapest 2003.
- [22] Quan Hua- Mike Barbetti- Martin Worbes- John Head- Vladimir A. Levchenko: Review of radiocarbon data from atmospheric and tree ring samples for the period 1945-1997 ad. In: IAWA Journal, Vol. 20 (3), 1999. p 261-283.
- [23] Némec M- Wacker L- Hajdas L- Gäggeler H.: Alternative methods for cellulose preparation for AMS measurement. In: Radiocarbon, 2010. Vol 52, Nr 2–3, p 1358–1370.
- [24] P. M. Grootes- G. W. Farwell- F. H. Schmidt- D. D. Leach- M. Stuiver: Rapid response of tree cellulose radiocarbon content to changes in atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ concentration. In: Tellus, 1989. 41B, p 134-148.
- [25] Schulze-König, Tim – Wacker, L. – Synal, H-A. (2011): Direct Radiocarbon Analyses of Exhaled Air. Journal of Analytical Atomic Spectrometry. 26, 287–292. DOI: 10.1039/C0JA00039F
- [26] Stuiver M.- Polach H.: Discussion Reporting of ^{14}C data. In: Radiocarbon, 1977. Vol.19 No.3 p 355-363.
- [27] Ingeborg Levin- Bernd Kromer: The tropospheric $^{14}\text{CO}_2$ level in mid-latitudes of the northern hemisphere (1959–2003). In: Radiocarbon, 2004. Vol 46, Nr 3, p 1261–1272.
- [28] Janovics R.- Kern Z.- Güttler D.- Wacker L.- Barnabás I.- Molnár M. : Radiocarbon impact of a light water vver type nuclear power plant in a nearby tree, Paks, Hungary. In: Radiocarbon, 2013. Vol 55, No 2–3

[29] S.H. Lamtom- R.A. Savidge: A reassessment of carbon content in wood: variation within and between 41 North American species. In: Biomass and Bioenergy, 2003. 25 p 381 – 388.