

Mohák bioindikátorként való alkalmazhatóságának vizsgálata

Készítette: Novák Máté

Témavezető: dr. Csordás Anita

Pannon Egyetem Mérnöki Kar, Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti
Tanszék

A pályamunka lezárásának dátuma: 2022.12.24.

Tartalomjegyzék

.....	Hiba! A könyvjelző nem létezik.
Bevezetés, célkitűzés	1
1 A polónium	2
1.1 A polónium tulajdonságai	2
1.2 A polónium előállítása és felhasználása	3
2 Po-210 izotóp	3
2.1 Természetes képződés: U-238 bomlási sor.....	3
2.2 A Po-210 kialakulása	4
2.3 A Po-210 tulajdonságai, hatása a szervezetre	5
2.4 A Po-210 detektálási elve	6
3 A mohák	8
3.1 Felépítés, szaporodás	8
3.2 A mohák fémtartalma, fém megkötési képessége	9
3.3 A mohák Pb-210 és Po-210 izotóp tartalma	10
3.4 A talaj Pb-210 és Po-210 izotóp tartalma	12
3.5 A bioakkumulációs faktor.....	12
4 Mérési adatok	13
4.1 A mintagyűjtési pontok.....	13
4.2 A méréshez felhasznált oldatok	15
4.3 A méréshez használt alfa spektrométer	16
5 A Po-210 meghatározásának menete	17
5.1 Minta előkészítés	17
5.2 A tracer Po-209 oldat	17
5.3 A kombinált savas feltárás	17
5.4 Törzsoldat készítése	18
5.5 Spontán depozíció	19
5.6 Alfa spektrometriás mérés	21
5.7 A kiértékeléshez használt képletek	21
6 Eredmények.....	24
6.1 A talajminták Po-210 aktivitáskoncentrációi.....	24
6.2 A mohaminták Po-210 aktivitáskoncentrációi.....	25
6.3 A moha Po-210 bioakkumulációs faktora	26
6.4 Az eredmények vizsgálata gyűjtési tájegység alapján	27
6.5 Az eredmények vizsgálata gyűjtési hely alapján, bioindikátorként való alkalmazhatóság elemzése	28
7 Összefoglalás.....	30
Irodalomjegyzék	31

Bevezetés, célkitűzés

A dolgozatomban vizsgált növény, a moha széles körben alkalmazott bioindikátor többféle kémiai anyag vizsgálatára. A bioindikátor olyan faj, amely képes az ember tevékenységének ökoszisztémára gyakorolt hatását nyomon követni, elemezni, értékelni. A moha alkalmazhatóságának magyarázata erre a célra az egyszerű felépítésében rejlik: nincs szilárdító és szövetrendszere, illetve kiterjedt gyökérrendszere sem. Emiatt a tápanyagait, például a vizet is a környezetből egész testén keresztül szívja fel. Számos kutatás eredményei alapján megállapították, hogy több különböző fémeket is nagy mértékben képes megkötni, nagyobb mennyiségben akkumulálni, fémtartalom vizsgálatára megfelelő indikátor növény.

Ezt alapul véve különböző radioaktív izotópok akkumulációját is vizsgálták már mohákban. Munkámban a polónium 210-es tömegszámú izotópjának aktivitáskoncentrációját vizsgáltam több, különböző mérési pontról származó dunántúli, illetve erdélyi mintában. A moha mellett talajminták gyűjtése is megtörtént a mérési helyekről, így célom volt a talaj-moha transzfer faktor meghatározása, vizsgálva a Po-210 izotóp talajból történő felvételét. Számos kutatás bizonyította, hogy a mohák esetében a légköri radionuklid felvétel is jelentős, így a gyűjtési helyek elhelyezkedése alapján vizsgálható az antropogén szennyező hatások befolyásolása az izotóp tartalomra.

Kutatómunkám célja tehát a mohák bioindikátorként történő alkalmazhatóságának vizsgálata a Po-210 radionuklid esetén. A vizsgálat során a talajból és a légkörből történő felvételt, a különböző természetes és antropogén tényezők befolyásoló hatását elemzem.

1 A polónium

A polónium felfedezése Pierre és Marie Curie nevéhez köthető. 1898-ban fedezték fel a szurokföld radioaktivitásának vizsgálata során. A mintában körülbelül 5-ször akkora aktivitást mértek, mint ami az akkor már ismert urán aktivitása alapján várható lett volna. A mintából bizmut-szulfid mellett, sósavas oldatban ülepítették ki és nyomjelzős kísérlettel igazolták a polóniumot, mint új elemet. A polónium nevét Marie Curie szülőhazája, Lengyelország (Polska) után kapta. [1]

1.1 A polónium tulajdonságai

Nagy sűrűségű ($9,32 \text{ g/cm}^3$), nehézfémek jellegű elem. Atmoszférikus nyomáson olvadáspontja 254°C , forráspontja 962°C .

A földkéreg egyik legritkább eleme, természetes előfordulása a teljes litoszférában: $3 \cdot 10^{-14}$ %. [3] Leggyakrabban az uránércben fordul elő kísérő nyomelemként. $100 \mu\text{g}$ polónium tartalom jellemző 1 tonna ércre. [2]

A periódusos rendszerben az elem a kalcogének csoportjában található, rendszáma 84-es. 41 ismert izotópja van, a természetben csak 7 fordul elő, többnek is a felezési ideje nagyon rövid. (Például a Po-211, 214, 215 és a 216-é.) [4]

Gyakorlatban csak három, viszonylag hosszabb felezési idejű izotópnak van jelentősége. Ezek a mesterségesen előállított Po-208 és Po-209, illetve a természetben előforduló, Po-210 izotóp, mely az U-238 bomlási sorába tartozik, és hosszabb felezési ideje (138 nap) miatt a leggyakoribb polónium izotóp a környezetben. A mintákban a Po-210 izotóp aktivitáskoncentrációját határoztam meg alfa spektrometriai módszerrel, melyhez nyomjelzőként Po-209-et is felhasználtam. [5]

A polónium több oxidációs állapotban is jellemző, ezek -II-es, a +II-es, a +IV-es és a +VI-os. Oldatban a legstabilabban, leggyakrabban előforduló a +IV-es. Jellemző tulajdonsága, hogy képes könnyen hidrolizálódni és $\text{Po}(\text{OH})_4$ kolloidot képezni.

Oldatban, sóképző reakcióban képes acetátokkal, kloridokkal, nitrátokkal oldható sókat képezni. [4]

1.2 A polónium előállítása és felhasználása

A Po-210 izotópot mesterségesen is előállítják, nukleáris reaktorban, a bizmut 209-es izotópjának neutron bombázásával. A besugárzás során rövid felezési idejű Bi-210 izotóp keletkezik, mely béta-bomlással alakul át Po-210-é. Az éves előállított mennyisége az izotópnak ezzel a módszerrel kb. 100 gramm.

Kereskedelmi felhasználása nagyon ritka rendkívül magas radioaktivitása miatt. A Po-210 izotópot nukleáris reaktorban állítják elő mesterségesen, a bizmut-209 izotóp neutron bombázásával. Ennek eredménye rövid felezési idejű radioaktív Bi-210, mely béta bomlással alakul Po-210 izotóppá. Az éves Po-210 termelés ezzel a módszerrel is csak kb. 100 gramm.

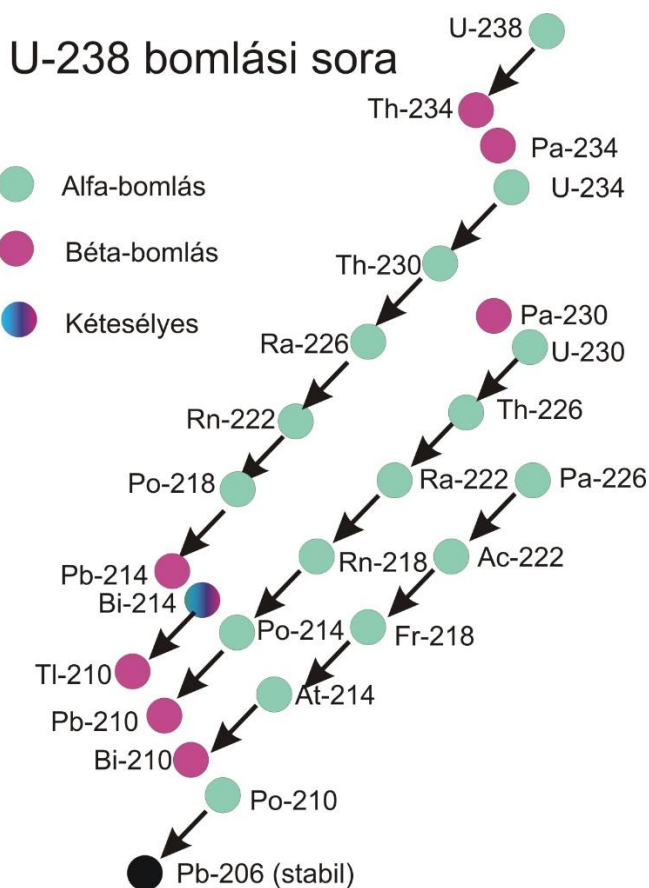
Magas radioaktivitása miatt használható üreszközökben, a jellemző alfa bomlással nagy mennyiségű hő képződik. 1 gramm polónium 500 °C eléréséhez szükséges hőforrást tud biztosítani. [6]

2 Po-210 izotóp

2.1 Természetes képződés: U-238 bomlási sor

Az urán 238-as tömegszámú izotópja a Föld kialakulási folyamata során került a magba, a köpenybe és a kéregbe. Nagyon hosszú, $4,4683 \pm 0,0096$ milliárd éves [7] felezési ideje miatt azóta is jelen van és folyamatosan bomlik leányelemeire. A bomlási folyamat során több kialakuló izotóp is képes feljutni a földkéreg magasabb részeire, illetve a felszínre is.

A földkéregben az átlagos mennyisége az uránnak 1,4 ppm. [8] Három izotópja közül, mely előfordul a természetben az U-238 a legjellemzőbb, 99,275 % az előfordulása. A másik kettő az U-235: 0,72% és az U-234: 0,005 % - (U-238 bomlási sorában). [9]



2.1. ábra: Az U-238 bomlási sora [10]

2.2 A Po-210 kialakulása

Az U-238 bomlási folyamatának első szakasza még jellemzően a földkéreg mélyebb részén zajlik a keletkező izotópok felezési ideje általában hosszabb, így a bomlásuk lassabb:

U-238 (4,5 milliárd év) » Th-234 (24,1 nap) » Pa-234 (1,17 perc) » U-234 (246000 év) » Th-230 (75380 év) » Ra-226 (1600 év) » Rn-222 (3,82 nap) [11]

A kialakuló radon nemesgáz, a Rn-222 izotóp képes diffundálni a földkéreg magasabb rétegeibe, és a talaj tulajdonságainak függvényében kisebb vagy nagyobb mértékben kijutni a földfelszínre, majd a légkörbe. Ezt az utóbbi folyamatot nevezzük exhalációnak. [12] A Rn-222 koncentrációja a felezési ideje és tulajdonságai miatt is a magassággal monoton módon csökkenő. [11]

A radon 222-es izotópjának bomlásával a sor jellemzően jóval rövidebb felezési idejű elemekkel a következőképpen folytatódik:

Po-218 (3,1 perc) » Pb-214 (26,8 perc) » Bi-214 (19,9 perc) » Po-214 (164 μ s) » Bi-210 (5,01 nap) » Po-210 (138 nap) » Pb-206 (stabil izotóp) [13]

Ezen radionuklidokra jellemző, hogy ha a légkörben alakulnak ki, képesek hozzátapadni a levegő részecskéihez és így később lerakódni a földfelszínen. Ez a folyamat a száraz lerakódás.

A száraz mellett jellemző a nedves lerakódás is, mely során az izotópok az esőcseppekhez tapadva képesek a földfelszínre visszajutni, de gyakran a további bomlás a légkörben maradva történik. [11] [12]

Az ólom 210-es tömegszámú izotópja Po-214-ből képződik alfa bomlással. A Po-210 vizsgálata szempontjából fontos radionuklid, mert jóval hosszabb felezési idejű (22,3 év), mint a Po-210 (138 nap). A felezési ideje miatt tehát ezen ólom izotóp kémiai és környezetbeli eloszlása jelentősen hatással van a polónium kialakulására. A Po-210 a Pb-210-ből az 5,08 napos felezési idejű Bi-210-en keresztül jön létre, két béta-bomlás által, a sor utolsó eleme pedig az alfa-bomlással kialakuló Pb-206, ami már stabil izotóp. [10]

2.3 A Po-210 tulajdonságai, hatása a szervezetre

Rendkívül mérgező radioaktív elem, azonban egészségügyi kockázata az alfa-részecske kis hatótávolsága miatt csak nagyobb mennyiség lenyelése esetén van. [13]

A kibocsátott alfa-részecskék magas energiájúak (5 MeV), de nagyon rövid hatótávúak, vízben, biológiai szövetekben 50 µm megtétele után elnyelődnek.

Azonban, az emberi sejtek átmérője csak 10-30 µm, így tud a lenyeléssel bejutott izotóp rendkívül destruktív hatással lenni a sejtek szerkezetére és a DNS-re. [14]

A lenyelt izotóp 50-90 %-a kiválasztódik a széklettel, a fennmaradó sugárforrás azonban az egész testben szétszlik. [15] Leggyakoribb, veszélyes lerakódási helyei a máj, a vese, a lép és a vörös csontvelő.

A szervezetet érő nagy dózis esetén kialakuló súlyosabb sugárbetegségeket ARS (acute radiation syndrome/akut sugárzási szindrómának) nevezik. Halálos dózis esetén a beteg halálát jellemzően több szervrendszer együttes elégtelensége, illetve az immunrendszer összeomlása okozza. [14]

Kutatók először patkányokon vizsgálták a Po-210 halálos dózisát. Megállapították az LD₅₀-et, a medián halálos dózist, mely 1,48 MBq/kg aktivitáskoncentráció esetén kialakuló dózis volt. Ez azt jelenti, hogy a tesztelt állatok 50%-ánál legalább bekövetkezik a halál adott vizsgálati idő alatt. (Itt 20 napra.) Jellemzően az ekkora dózist elszenvedett patkányokban fokozatos állapotromlás után súlyos szövetkárosodás volt a halál oka. A tetemek vérében jellemzően komoly hemoglobin, limfocita és vörös, illetve fehérvérsejt hiányt tapasztaltak.

2.1. táblázat: A különböző aktivitáskoncentrációjú Po-210 sugárterhelés hatása a patkányokra [16]

Aktivitáskoncentráció	Tapasztalt hatás
1,48 MBq/kg	az egyedek több mint felénél bekövetkezett a halál 20 nap után.
0,4-1,1 MBq/kg	50-250 nap után elpusztult az állatok jelentős része, főként májkárosodás miatt.
0,04-0,4 MBq/kg	300-500 nap után elpusztult az állatok jelentős része.
0,02-0,04 MBq/kg	Nem történt haláleset, de az állatok élettartama 10-20 százalékkal csökkent.
0,01 MBq/kg	Nem tapasztaltak sugárzás okozta tünetet.

A tüneteket okozó aktivitáskoncentráció határa 0,02 MBq/kg, tehát 20000 Bq/kg volt. [16]

Ezzel összehasonlítva az ember által bevitt Po-210 izotóp aktivitáskoncentrációja naponta, élelmiszerek elfogyasztása által 0,037-0,37 Bq/kg között van. Elemezték a csontváz átlagos polónium tartalmát, az izotóp lerakódásának mértékét is, ez általánosságban 1,295-1,48 Bq/kg között van. [17]

2.4 A Po-210 detektálási elve

A Po-210 aktivitáskoncentráció mérése leggyakrabban alfa-spektrométerrel történik, a méréseim során használt eszköz is egy félvezető alfa kamra volt, félvezető PIPS (Passive Implanted Planar Silicon) detektorral.

A detektálás vákuumban történt az alfa részecskék kicsi hatótávolsága miatt. [18]

A detektorban használt félvezető anyag tulajdonsága, hogy a betöltött vegyértékelektronsáv és a szabad elektron vezetési sáv között rendelkezik egy energetikailag nem megengedett, úgynevezett tiltott sávval. Amennyiben a félvezető kristályszerkezetébe 3 vagy 5 vegyértékelektronos, úgynevezett szennyező anyag kerül, akkor vagy p-típusú elektronhiányos, vagy n-típusú, elektrontöbblettel rendelkező félvezető alakul ki.

Ha egy n és p-típusú félvezető anyagot szoros érintkezésbe hozunk, akkor kialakul egy semleges réteg, az úgynevezett kiürített tartomány, itt a pozitív és negatív töltések száma megegyezik. Ez a rész lesz a detektor érzékeny térfogata. Amikor ebbe a térrészbe alfa-

részecske kerül, szabad töltéshordozók alakulnak ki, a réteg vezetővé válik, és áramimpulzus érzékelhető. Az áramimpulzus a feldolgozás első lépéseként jel erősítő rendszerre kerül. Innen felerősített jelsorozatként lép ki, mely sokcsatornás analizátorra kerül, ahol az adatok feldolgozása történik, és a detektorra kötött számítógépen kerül kiértékelésre a kapott alfa-spektrum. [18]

Az eredményként kapott alfa-spektrum csúcs alatti területe arányos az izotóp koncentrációjával, illetve a különböző radionuklidok eltérő, adott izotópra jellemző energián adják le alfa-részecskéiket, ezt az energiaszintet a csúcs helye határozza meg a spektrumon. [19]

Az izotóp detektálására a leggyakrabban használt módszer az ismertetett, félvezető alfa spektrometriai módszer. A detektorba helyezett alfa-forrás elkészítésére azonban több módszer létezik. Dolgozatom gyakorlati munkájában a spontán depozíció módszerét alkalmaztam, ahol az oldatban levő Po(IV)-ionok Ni tartalmú acéllemezre spontán leválnak.

Forrás készítéséhez gyakran történik a leválasztás ezüst tartalmú lemezre is, mert ennek a legjobb a hatásfoka, viszont az anyagköltsége drágább. 7-8 %-os hatásfok csökkenéssel, hasonlóan a nikkelhez, réz tartalmú, illetve csak rozsdamentes acél tartalmú lemezre való leválasztással is detektálható a Po-210. [20] [21]

Teljesen más típusú forráskészítési módszerekkel is vizsgálták már kutatások az izotópot.

2014-es kanadai tanulmány víz és vizelet mintákban mérte a Po-210 mennyiségét. A mintaelőkészítés során réz-szulfid mellett csapadék formában leválasztva készítették el a forrást. A PoS alacsony oldhatósága miatt képes kicsapódni a CuS mellett. Az ivóvíz esetében közvetlenül egy szűrőre koprecipitálták az izotópot. Az alkalmazott szűrőből készítették el ezután a vékony réteg forrást szilikon detektoros alfa-spektroszkópiához. A vizelet mintákat melegítés után KBrO₃-al oxidálták, majd centrifugálták a szuszpendált szerves anyagok eltávolítására. Az oldat felső fázisából végezték el ezután a precipitációt. Ezzel a módszerrel magas visszanyerési aránnyal (kb. 85 %) készíthető elő nagy mennyiségű minta. A módszert validálták, hogy megfelel a sürgősségi és rutinszerű radioanalízis követelményeinek.

Az ilyen, koprecipitációs minta előkészítés előnye, hogy számottevően gyorsabb a spontán depozíciós módszernél, így például radiológiai szennyezéssel járó esemény után gyorsan mérhető lehet a polónium tartalom.

Ilyen célból 2019-es egyesült államokbeli kutatás dolgozott ki gyors mintaelőkészítési eljárást. A vizsgált beton, talaj és gránit mintákat NaOH-al olvasztották, hogy a minta feltárása során a polónium illékonysága a minimálisra csökkenjen és a minta teljes feloldódása megvalósuljon. A polóniumot vas-hidroxiddal való kicsapással és extrakciós kromatográfiával

A mohák

elválasztották és koncentrálták. A forrás elkészítéséhez itt bizmut-foszfáttal végezték el a mikrocspadék leválasztást a szűrőre. Összességében a folyamatot megfelelően alkalmazhatónak találták vészhelyzeti felhasználásra. A teljes előkészítés összességében körülbelül 3 órával ezzel a módszerrel.

Több tanulmány is dolgozott már folyadékszintillációs spektroszkópiával (LSC) a Po-210 mérésére. Egy 2021-es kínai kutatásban a Pb-210-zel párhuzamosan vizsgáltak tengeri élőlények izotóp tartalmát, melyhez Ultima Gold™ AB és OptiPhase HiSafe 3 koktél alkalmaztak. Az eluálószer HNO₃ oldat volt a Po-210-re. A teljes mérési folyamat ezzel a módszerrel csak 2 nap volt, így előnye a módszernek, hogy gyorsabban elvégezhető, mint a mintaelőkészítés miatt jellemzően sokkal hosszabb alfa-spektrometriás mérés. A módszer hátránya a magasabb detektálási határ, illetve a kisebb pontosság az alfa-spektrométerhez képest. Egy garnélarák mintát hasonlítottak össze hitelesített alfa-spektrométer eredményével Po-210-re. Itt kimagasló pontatlanságot nem tapasztaltak, 124 ± 7 Bq/kg aktivitáskoncentrációt mértek a referencia 134 ± 3 Bq/kg-os eredményhez viszonyítva. [22]

Az izotóp bomlásakor kibocsátott alfa-részecskéket kíséri még nagyon alacsony intenzitású gamma sugárzás is. Viszont körülbelül csak minden százazredik bomlás jár gamma sugárzás kibocsátásával. Így gamma detektálás alapú meghatározással még nem is végeztek kutatásokat a Po-210 mérésére. [23]

3 A mohák

A mohák rendszertanilag a zöldmoszatok és a harasztok között helyezkednek el. Az evolúciós fejlődés során egy ideig párhuzamosan fejlődtek a harasztokkal, de egy idő után a mohák fejlődése külön zsákutcába került, a harasztokból viszont kifejlődtek a nyitvatermők. [24]

3.1 Felépítés, szaporodás

Szárazföldön élő, alacsony növekedésű növények, de a szárazföldi növény rendszertani besorolás feltételeit se teljesítik, ugyanis nincsen igazi szilárdító és szövetrendszerük. Valódi gyökerük és levelük sincsen. A szaporodást spórával végzik. A spórából először egy zöld, fonalas, moszatszerű előtelep, a protonema hajt ki. Ebből jön létre a mohanövény testje, az ivaros nemzedék. Hajtásának csúcsán fejlődnek ki az ivarszervek. A hím ivarsejtek a környezetbe kijutás után a moha levelén megmaradó eső vagy harmatcseppeken keresztül találják meg a kémia ingert kibocsátó petesejteket és termékenyítik meg.

A mohák

A megtermékenyítés után alakul ki, még az anya mohatesten az ivartalan része az új keletkező mohának, a nyeles spóratartó tok. Itt redukciósan osztódva spórák keletkeznek, amelyből kifejlődik az új növény. A moha ilyen szempontból különleges minden más növényhez képest, hogy nagyobb ivaros nemzedékkel (magával a mohanövénykével) rendelkeznek, mint ivartalannal.

A különböző mohafélék jellemzően szőnyegszerűen, vagy párnaként borítják be az aljzatot, képesek nagy mennyiségben is vizet magukba szívni, és védeni a talajt az eróziótól.

A vizet és a benne oldott sókat egész testükön keresztül veszik fel, a gyökér és a levél hiánya miatt fontos, hogy így képesek legyenek a lehető legnagyobb mennyiségben tápanyaghoz jutni. [25]

Ez képezi az alapját azon kutatásoknak, hogy nagyobb mennyiségben képesek fémeket, nehézfémeket, mint pld. a radioaktív elemeket is megkötni.

3.2 A mohák fémtartalma, fém megkötési képessége

Thöni 1995-ös kutatása Svájcban, 3 mintagyűjtési ponton elemezte számos nyomelemként jellemző fém mennyiségét moha mintákban. A fémek meghatározásához ICP atomemissziós és ICP tömegspektroszkópiát használtak. Szezonálisan vizsgálták az esetleges fémtartalom változást, de nem tapasztaltak számottevő eltérést a különböző évszakokban. Minden mérési ponton meghatározták a légkörből történő tömeges lerakódást az úgynevezett Bergerhoff-féle mérési módszerrel egy több hónapra kihelyezett polipropilén felületi nyitott eszközzel. [26]

Leginkább kvantitatív összefüggést a cink és a króm esetében találtak összehasonlítva a mohamintákat más skandináv vizsgálatokkal [27] és a légköri lerakódással is.

Csak erre a vizsgálatra korlátozva, számos fém (cink, króm, ezüst, alumínium, arzén, réz, vas, gallium, germánium, lantán, nikkel, ólom, titán, vanádium és volfrám) esetében tapasztalható volt összefüggés a moha fémtartalma és a légköri lerakódás között. A kadmium, molibdén, nióbbium, tórium és az urán esetében is tapasztalható volt korreláció, de a különböző mohaminták esetében jóval szélesebb tartományban változtak a mért koncentrációk. Összességében a mért $\mu\text{g/g}$ -nyi nagyságrendű fém mennyiségek a króm és a higany kivételével számottevően nagyobbak voltak, mint a referencia növényben, az olajfa levelében mért adatok. [26]

Egy 2003-as olaszországi kutatás vizsgálta számos fémre (Al, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Li, Mg, Mn, Na, Ni, P, Pb, Sr, Ti, Zn) a mohák koncentrációját. Atomemissziós és atomabszorpciós spektroszkópiával dolgoztak, különböző mérési pontokról kerültek

A mohák

összehasonlításra a minták: tiszta hegyvidéki területekről, nagyobb városokból és kifejezetten szennyezett ipari településről is, ahol már történt fémszennyezés a környékbeli folyóban.

Az ipari településen mért mennyiség néhány, jellemzően antropogén eredetű fém esetében magasan kiemelkedett: például a króm mennyisége kb. háromszoros, a réz hatszorosa volt a szomszédos városban mért adatokhoz képest. A többi mérési ponton az eredmények nagyságrendileg korreláltak az előbbieken ismertetett svájci kutatással.

Általánosságban is tapasztalható az adatokban, hogy a tiszta, hegyvidéki minták eredményei számottevően alacsonyabbak voltak szinte az összes mért fém esetében, mint a városiaké.

Az ezüstmohával végzett kutatás során a magasabb szennyezettségű helyen jelentős bioakkumulációt tapasztaltak a mintákban a talaj fémtartalmához képest is. A mohaminták krómtartalmára a szennyezett településen a dúsulási tényező, a moha-talaj aktivitáskoncentráció arány 42-szeres volt.

A városi útmenti mérési pontokon pedig nagyobb dúsulási tényezőt tapasztaltak az ólomra is a mohaminták esetében a közlekedésből adódóan.

A bioindikátorként való alkalmazhatóságot kemometriai módszerekkel, főkomponens analízissel és klaszter elemzéssel vizsgálták. A kapott eredmények alapján, a két vizsgált városi botanikus kert, az útmenti vizsgálati pontok korreláló adatai, a szennyezett ponton az antropogén fémek kiemelkedő mennyisége és a nedvesebb évszakban általánosan az összes mérési ponton mért nagyobb eredmények alapján (melynek oka valószínűleg a fémek elérhetőségének növekedése és a moha gyorsabb anyagcseréje,) megállapították, hogy az ezüstmoha kitűnően alkalmas bioindikátornak. [28]

3.3 A mohák Pb-210 és Po-210 izotóp tartalma

A fentebb is ismertetett különböző tulajdonságú fémekre tapasztalható bioakkumulációs és bioindikációs képesség alapján több külföldi kutatás is vizsgálta a mohákat különböző radioaktív izotópokra is. A mohák mellett az elvégzett vizsgálatok még jellemzően a zuzmókra terjedtek ki.

A következőkben az ezen kutatásban vizsgált Po-210-re és a bomlási sorban közvetlenül előtte elhelyezkedő Pb-210-re elvégzett kutatások eredményei kerülnek összegzésre.

Már 1979-80-as kutatás is vizsgálta a mohák Po-210 tartalmát Svédországban. Ez a mérés még nem terjedt ki arra, hogy kifejezetten bioindikációs célból vizsgálják a növényeket. Az aktivitás a vizsgált mintákban 185-960 Bq/kg között változott. [29]

2000-es indiai vizsgálat mérte moha minták radioaktivitását egy atomerőmű közelében. Po-210-re az aktivitás több ponton is kimagasló volt, a legmagasabb mért érték 2724 Bq/kg volt. [30]

2005-ből egy szír kutatás adatai állnak rendelkezésre Földközi-tenger közeli mediterrán éghajlatú régióból mohaminták Po-210 és a Pb-210 aktivitáskoncentrációjára. A két vizsgált mohafaj eredményei a különböző mérési pontokon viszonylag széles tartományban, a Po-210-re 341-1322 Bq/kg és 214-2392 Bq/kg között változtak. A Pb-210 esetében az eredmények 165-1450 Bq/kg és 214-2392 Bq/kg között alakultak. [31]

2011-ben törökországi kutatók vizsgálták széntüzelésű erőművek közelében a mohák és zuzmók aktivitáskoncentrációját és biondikátorként való alkalmazhatóságát Po-210 és Pb-210 izotópokra. Általánosságban véve, az indikátorként való alkalmazhatóság oka, az ilyen szennyezettebb területeken az, hogy ezek az izotópok a korábban ismertetett földkérgi bomlás mellett származhatnak antropogén tevékenységből is, mint a fosszilis anyagok égetése, a műtrágyaipar, vagy a kipufogógázai a közlekedésnek. [32]

A szénertőmű működése során keletkező hamu és pernye más kutatások alapján is kiemelkedő mennyiségben tartalmazza a földkérgi eredetű radionuklidokat. [33]

A mérési eredmények 4 erőmű környezetéből, 16 mérési pontról származtak, a kapott aktivitáskoncentrációk más környezeti minták jellemző eredményeihez képest jóval magasabbak voltak. Az izotópok aktivitáskoncentrációja a mohamintákban átlagosan magasabb volt, mint a zuzmóban, a mohában a Po-210-é 124-1125 Bq/kg, a Pb-210-é 94-725 Bq/kg között változott. Jellemzően alacsonyabb aktivitáskoncentrációt tapasztaltak a sűrűbb erdei, aljnövényzet által jobban árnyékolt, illetve alacsonyabb ponton szedett mohaminták esetében. Minden egyes minta, még az azonos mohafaj több példánya esetében is eltérő értékeket mértek.

Összességében két mohafaj esetében tudták kifejezetten igazolni az erőműhöz képest tapasztalt elhelyezkedés alapján a bioindikációs képességet a kutatásban. A többi minta esetében is tapasztalható volt aktivitáskoncentráció csökkenési tendencia a távolsággal az erőműhöz képest, de jelentős mértékben befolyásolja, és szórta a mért értékeket a mohaminta elhelyezkedése a növényzetben. [34]

3.4 A talaj Pb-210 és Po-210 izotóp tartalma

A talaj esetében a felsőbb rétegekben a Pb-210 és a Po-210 tartalom több kutatás alapján is eredhet a már korábban ismertetett földkérgi U-238 bomlási sorából, illetve a légkörbe kijutott izotópok jellemzően csapadékkal történő visszajutásával a felszínre.

Több kutatás eredményeit összegezve Európa szerte, illetve Szaúd-Arábiából a talaj Po-210 izotóp aktivitáskoncentrációja számottevően alacsonyabb, mint a moháé vagy a zuzmóé, az értékek 20-240 Bq/kg között változtak. A mérésre félvezető detektoros (HPGe) gamma spektrometriai módszert alkalmaztak. [29]

3.5 A bioakkumulációs faktor

A radioizotópok vizsgálatára a környezetben széleskörben alkalmazzák a bioakkumulációs faktort. (BAF) A bioakkumulációs faktor a vizsgált radionuklid talajból növénybe történő átviteli tényezője. Értéke a növényben található izotóp koncentrációja és a talajban található izotóp koncentrációjának hányadosa. (3.1.) [35]

$$BAF = \frac{C_{\text{növény}}}{C_{\text{talaj}}} \quad (3.1)$$

Ahol:

C növény = a növényben a vizsgált izotóp aktivitáskoncentrációja [Bq/kg]

C talaj = a talajban a vizsgált izotóp aktivitáskoncentrációja. [Bq/kg]

2018-as koszovói kutatás vizsgálta a talaj-moha bioakkumulációs faktor értékeit több radioaktív izotópra is. 12 mohamintát vizsgáltak, mindegyik városon kívüli környezetből származott. A fontosabb gamma-sugárzó izotópokat (Ra-226, K-40, Th-232) gamma-spektrometriás módszerrel határozták meg. Ezen izotópoknál a kapott aktivitáskoncentráció értékek a mohaminták esetében jellemzően alacsonyabbak voltak a talajban mérthez képest.

A bioakkumulációs faktor értékei a 12 gyűjtési ponton Ra-226-ra 0,04-0,28, Th-232-re 0,03-0,33, K-40-re 0,13-3,63 között változtak. Ezen eredmények arra utalnak, hogy a mohák talajból való radioaktív izotópokra vonatkozó felvételi képessége jelentősen korlátozott, valószínűleg az ismertetett egyszerű felépítés miatt. A rádium és tórium izotópok ugyanis még a radon előtt helyezkednek el a bomlási sorban és a levegőbe kijutó koncentrációjuk jóval alacsonyabb. A kálium-40 szélsőségesebb adatai pedig, mivel természetesen jelenlevő izotóp a K-39 mellett valószínűleg az adott mohaminta környezetből felvett kálium tartalmától függenek. [36]

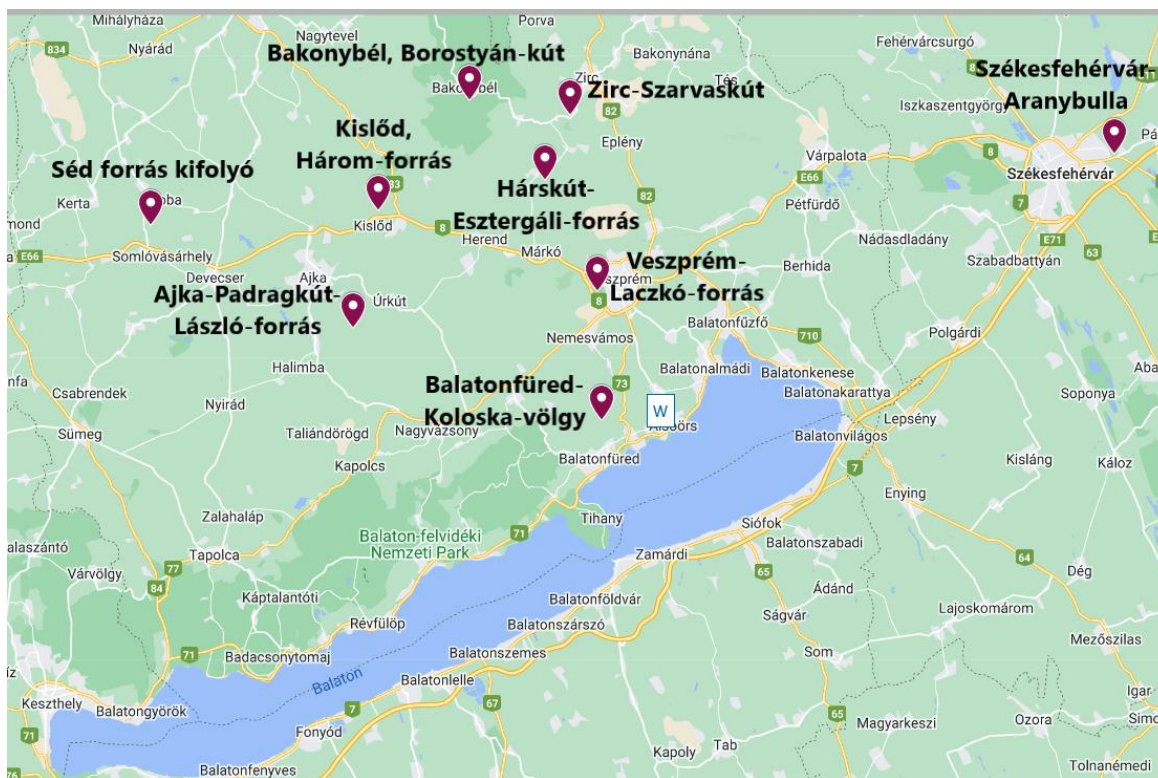
Gyakorlati munkám során meghatároztam a moha-talaj mintapár Po-210 aktivitáskoncentrációját, majd ezekből a bioakkumulációs faktor értékeit. Ez alapján vizsgáltam azt a feltételezést, hogy a moha fém, így radionuklid tartalmát elsősorban nem a talajban zajló folyamatok befolyásolják, hanem sokkal jelentősebb a légkörből történő akkumuláció, esetleges hiperakkumuláció.

4 Mérési adatok

Gyakorlati munkám során összesen 9 különböző helyről származó magyarországi, dunántúli moha és talaj mintapárt, illetve 4 erdélyi pontról származó mintát vizsgáltam. Az erdélyi pontok esetében, az egyik helyről, a torjai bűdösbarlangtól csak mohaminta állt rendelkezésemre.

4.1 A mintagyűjtési pontok

A magyarországi mintagyűjtés őszi időszakban történt. Egy, a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézetében párhuzamosan futó munka miatt a magyarországi, bakonyi minták többségében vízforrások mellől származnak. Ez alól kivételt csak a balatonfüredi Koloska-völgyből és a székesfehérvári Aranybullától származó minta képez. A pontokat térképre helyezve a mintagyűjtési zóna lefedi a Bakony jelentős részét.

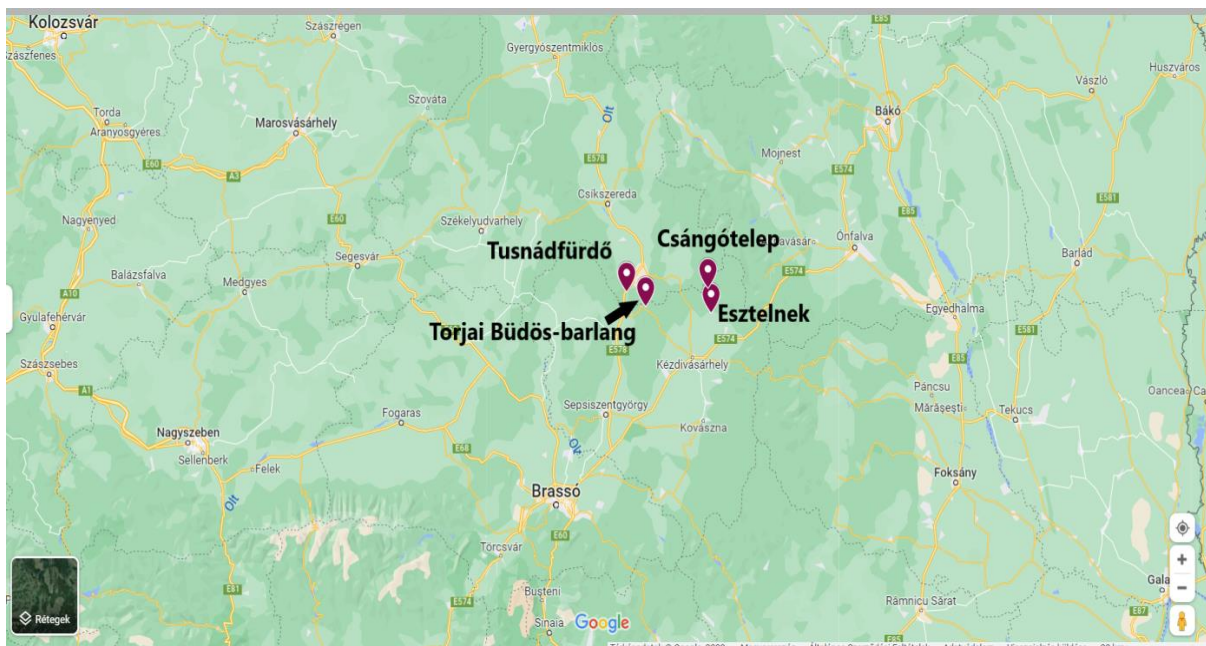


4.1. ábra: A dunántúli gyűjtési helyszínek

Mérési adatok

A pontok közül a veszprémi, balatonfüredi, székesfehérvári és zirci pont tisztásról, aljnövényzet által kevésbé takart részről származott. Szintén tisztásról, de aljnövényzettel burkoltabb területről származik a hárskúti és a kislódi minta. Erdősebb, völgyesebb rész jellemző az ajkai mintára. Ligetes, ritkán erdős környezet jellemző a bakonybéli mérési pontra, kevés aljnövényzettel a moha szedési pontja körül.

A Somló hegy mérési pontja szőlőskertek mellől, hegyoldalból származott, a forrás lefolyójától.



4.2. ábra: Az erdélyi gyűjtési helyszínek

Az erdélyi minták 2 hónappal korábbról, egy nyár végi gyűjtésből származtak. Itt a pontok elhelyezkedése Kovászna megye északi és Hargita megye déli része. A tájegység a Kelet-Kárpátok, a Hargita-hegység része, de származik völgyből is minta, a 12-es mérési pontról, mely ritkábban erdős, tőzeglápos terület. A további mérési pontok 900-1100 méter magasság között helyezkednek el, mindenhol hegygerincekről, kevésbé sűrű erdei részről lett a minta gyűjtve.

4.1. táblázat: A mintagyűjtés helyszínei és a minták azonosítói

Minta kódja	Gyűjtési hely
M1, T1: moha és talaj	Laczkó forrás-Veszprém
M2, T2: moha, talaj	Három forrás, Kislőd
M3, T3: moha és talaj	Séd forrás kifolyó, Somlósztől
M4, T4: moha és talaj	Ajka-Padragkút, László forrás
M5, T5: moha és talaj	Hárskút, Esztergáli forrás
M6, T6: moha és talaj	Bakonybél-Borostyán-kút
M7, T7: moha és talaj	Zirc-Szarvaskút forrás
M8, T8: moha és talaj	Balatonfüred-Koloska-völgy
M9, T9: moha és talaj	Székesfehérvár-Aranybulla
M10, T10: moha és talaj	Carpinenii-Csángótelep
M11, T11: moha és talaj	Estelnic-Esztelnek
M12, T12: moha és talaj	Tusnádfürdő-Veresvíz forrás
M13: moha	Peștera Sulfuroasă-Torjai büdösbarlang

4.2 A méréshez felhasznált oldatok

A kombinált savas feltérési folyamat során az alábbi oldatokat használtam fel:

HNO₃: 65%-os

HCl: 38%-os

H₂O₂: 30%-os

A nyomjelzőként használt Po-209 oldat adatai:

Gyártási dátum: 2005.12.21.

Pontos aktivitáskoncentráció a törzsoldat gyártásakor: 43,83098 mBq/g

Felezési idő: 103 év

A savas feltérési során és a későbbi törzsoldat elkészítésekor is használtam a fentebbiek mellett ultratiszta ionmentes vizet is.

4.3 A méréshez használt alfa spektrométer

Az aktivitás mérésére használt mérőrendszer kétkamrás alfa spektrométer volt. A meghatározás félvezető alapú (PIPS-Passive Implanted Planar Silicon) detektorral történt.

Típusa: Ortec Alpha Duo

Energiafelbontás: <20 keV [37]



4.3. ábra: A kétkamrás Ortec Alpha Duo spektrométer

A rendszer kalibrálása hármassal történt, mely kevert típusú sugárforrás. A kalibrálás során a forrás ugyanakkora távolságra volt a detektortól, mint később a minta.

4.2. táblázat: A hármass forrás adatai

<u>Izotóp</u>	<u>Aktivitás (dps: bomlás/mp)</u>
Am-241	945 dps
Cm-244	136 dps
Pu-239	686 dps



4.4. ábra: A hármass forrás

5 A Po-210 meghatározásának menete

A mérés a polónium vizsgálható állapotba hozásához kombinált savas feltáráson alapul. Tömény savakkal a moha, talaj és bármilyen más szerves minták is jól elroncsolhatóak, hogy később a minta polónium tartalma könnyen vizes oldatba legyen vihető. A vizes oldatban az elem Po^{4+} ion formájába kerül, és képes kiválni, itt a mérési folyamat során negatívabb standard potenciálú fém, nikkel felületére.

5.1 Minta előkészítés

A gyűjtésekből származó mintákat levegőn szárítottam, közben ellenőrizve a tömegállandóság elérését analitikai mérleggel. A szárítás után a mintákat dörzsmozsárban porítottam, majd átszitáltam.

5.2 A tracer Po-209 oldat

A mintákból minden meghatározásnál 1 g körüli mennyiségeket mértem ki analitikai mérleggel. Ezután hozzáadtam a mintához minden esetben 2 g Po-209 nyomjelzőt (tracer) automata pipettával. Mint ahogy az elméleti részben is már megemlítsre került, a bemért tracer ismert aktivitása a kulcsa a Po-210 kezdeti aktivitásának meghatározásához a mérés előtti tiszta mintában. A nyomjelző izotóp ugyanis ugyanúgy viselkedik a mintaelőkészítési során, mint a mérendő izotóp ezáltal a mintaelőkészítési és a spontán depozíciós folyamat hatásfoka meghatározható.

5.3 A kombinált savas feltárás

A feltárás során az oldatokat 80 °C körüli hőmérsékleten kezeltem. 90 °C környékén a polónium már elillanhatna az oldatból, így ezt a megfelelő hőmérsékletet főzőlapon állítottam be és végig ellenőriztem hőmérővel.



5.1. ábra: Az oldatok az első salétromsavas adagolás után

A feltárási folyamat első lépéseként tömény salétromsavval (65%-os HNO_3) kezeltem az oldatokat. 25 cm^3 -t adagoltam hozzájuk és 5 cm^3 körüli mennyiségig hagytam bepárolódni. A salétromsav adagolás célja a minta szerves anyag tartalmának elroncsolása. Ezt és a további feltárási, bepárlási lépéseket is háromszor végeztem el minden esetben.

A feltárási folyamat következő lépéseként a háromszori bepárlást tömény sósavval végeztem el, melynek az a feladata, hogy elűzze az oldatban itt jelenlevő nitrát-ionokat. Emellett hozzáceppentettem mindegyik adagoláskor 2-3 cseppnyi tömény hidrogén-peroxidot is, hogy teljesen elűzze a maradék szerves anyagot az oldatból.

Az utolsó háromszori bepárlás ultratiszta, ionmentes vízzel történt a minta savkoncentrációjának csökkentése miatt.

5.4 Törzsoldat készítése

A mintáktárfeltárást után szobahőmérsékletre hűtöttem, majd 100 ml-es törzsoldatokat készítettem mindegyikből. Ehhez 10 ml 6 M HCl-al elegyítettem a mintákat és átmostam egy 100 ml-es mérőlombikba. A lombikot ezután az ultratiszta vízzel jelre töltöttem és összeráztam.

Főként a talajminták esetében itt még jellemző az oldatban nagyobb szemcseméretű anyagmaradék, ezért a talaj és mohamintákat is minden esetben vákuumszűrőn szűrtem át.



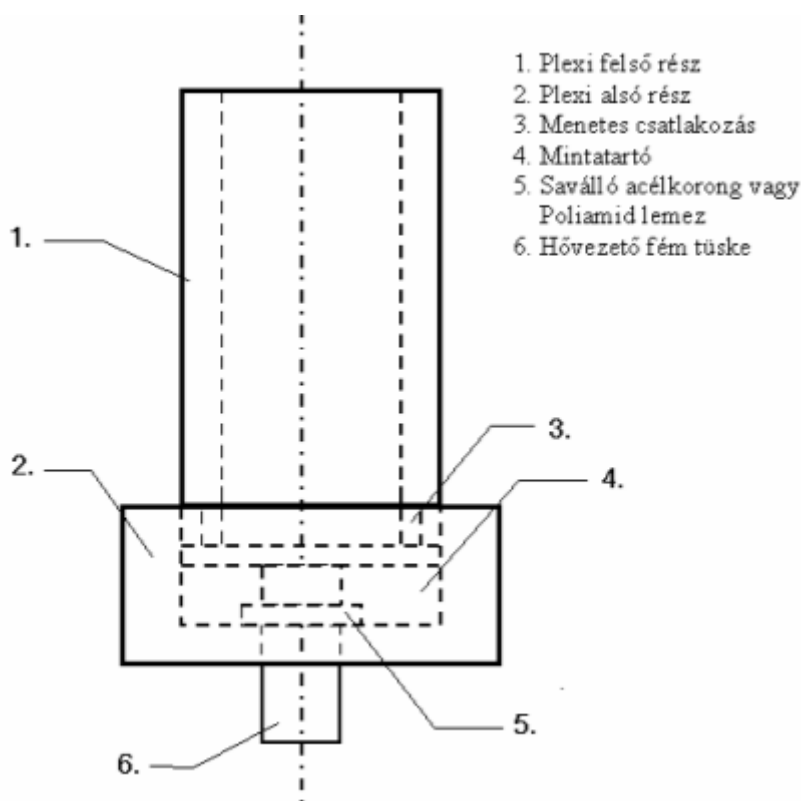
5.2. ábra: A törzsoldat és a vákuumszűrő

5.5 Spontán depozíció

A spontán depozíció a folyamat azon része, ahol a vizes oldatból leválás történik. A Po(IV)-ionok itt magasabb hőmérsékletű közegben képesek spontán leválni negatívabb standardpotenciálú fém felületére. A törzsoldatból a leválasztást az 5.3 ábrán látható spontán depozíciós cellában végeztem el.

Az anyag amelynek felületére leválasztásra került a Po(IV)-ion, egy nikkel tartalmú acélkorong volt. (KO 33 MSZ 9-11%-os Ni lemez, saválló, 0,55 mm vastag, 18,3 mm átmérőjű.) Használata előtt eltávolítottam róla a védőfóliát és acetonnal alaposan megtisztítottam a felületét, mert ennek tökéletes elvégzése nélkül meghiúsul a mérhető leválasztás.

A lemez előkészítése után összeszereltem a spontán depozíciós cellát. A cella alsó részén található mintatartóba először egy gumi gyűrűt tettem majd a depozíciós korongot, úgy, hogy a megtisztított fele legyen a cella belső oldalán, mely érintkezik az oldattal. A korong tetejéhez helyeztem egy fém tűskét, mely a hővezetést végzi, majd ezt összeszereltem a mintatartó plexi alsóbb részével. Majd az egész összeszerelt alsó részt megfordítottam, és az erre kialakított meneten rácsavartam a plexi felső részét.



5.3. ábra: A spontán depozíciós cella vázlatos felépítése [34]

A depozíciós cellába először ionmentes vizet öntöttem, és pár percig vártam. Ez a belső tér kiöblítését, és a szivárgásmentesség ellenőrzését szolgálta. Az üres cellába ezután 25 cm^3 oldatot öntöttem, (több kísérlet után meghatározva, hogy ekkora mennyiséggel a legjobb a leválasztás) és 25 cm^3 ionmentes vizet.

Ezután késhegynyi aszkorbinsavat ($\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_6$) öntöttem az oldathoz. Ez azt a célt szolgálta, hogy a cellában lévő oldatban lévő vas (III)-ionokat vas (II)-vé redukálja, ugyanis az előbbi akadályozná a Po(IV) kiválását a lemezre.

A depozíciós folyamat során a melegítéshez és kevertetéshez használt eszköz a Dlab MS-H380-Pro volt. A mágneses kevertető melegítő felületére helyezett vízfürdőben tartottam végig az oldatokat. A vízfürdőt 80°C hőmérsékletre melegítettem, a hőmérsékletet folyamatosan ellenőriztem hőmérővel, az elpárolgott folyadékot folyamatosan pótoltam. A vízfürdőben a cella 3 órán keresztül volt, mely alatt a polónium-ion mérhető mértékben kivált a korong felületére.

5.6 Alfa spektrometriás mérés

A korongot a depozíció után előkészítettem az alfa spektrometriás mérésre: leöblítettem ionmentes vízzel és levegőn hagytam megszáradni. Ezután behelyeztem a félvezető detektorba, minden mérés esetében ügyelve, hogy ugyanakkora távolságra legyen a korong a detektortól. A Maestro kezelőprogramjával a kamrának vákuumszivattyúval vákuum alá helyeztem a rendszert, nagyfeszültséget adtam a kamrára és elindítottam a mérést. Minden minta esetében a mérést 80000 másodperces mérési idővel végeztem el.

Ez a félvezető detektoros mérés egyszerre végez minőségi és mennyiségi meghatározást is. Minőségit, mert az ilyen rendszerben minden izotópnak saját jellemző gerjesztési energiája van, és hogy a spektrumon hány keV energián jelentkezik a csúcs, egyértelműen meghatározza, hogy az melyik izotóphoz tartozik. A Po-209 izotóp csúcsa 4883 keV-on [39], a Po-210 izotópé pedig 5304 keV-on [40] jellemző. Mennyiségit, mert az adott csúcs alatti terület nagysága arányos az azon az energián jellemző izotóp aktivitásával.

A feltárás utáni aktivitás a számítógépes program által kiértékelés után kapott csúcs alatti területtel arányos. A csúcsokat kézzel jelöltem ki és leolvastam a csúcs alatti nettó területet, mely a vizsgált izotópnak a beütésszáma. Ebből több képleten keresztül meghatározható a feltérési előtti aktivitása a Po-210 izotópnak.

5.7 A kiértékeléshez használt képletek

Az összesített képlet a Po-210 aktivitásra

$$c_A = \frac{(r_g - r_0) \cdot A_T}{(r_{gT} - r_{0T}) \cdot m} \quad (5.1)$$

ahol:

- c_A : a minta kezdeti Po-210 aktivitáskoncentrációja [Bq /kg]
- r_g : másodpercenkénti beütésszám a Po-210 energiatartományában [cps]
- r_0 : másodpercenkénti háttér beütésszám a Po-210 energiatartományában [cps]
- r_{gT} : másodpercenkénti beütésszám a Po-209 (tracer) energiatartományában [cps]
- r_{0T} : másodpercenkénti háttér beütésszám a Po-209 (tracer) energiatartományában [cps]
- A_T : Po-209 ismert kezdeti aktivitása a mintához adáskor [Bq]
- m : vizsgált minta tömege [kg]

Mivel az 5.1 képlet a másodpercenként tapasztalható beütésszámmal dolgozik (cps), elosztottam a detektorról leolvasott két nettó beütésszámot (Po-209, Po-210) a mérési idővel.

$$r_i = \frac{I_i}{t_i} \quad (5.2)$$

ahol:

- r_i : másodpercenkénti beütésszám [cps]
- I_i : a leolvasott összbeütésszám
- t_i : mérési idő [s]

Mivel a képletben a pontos meghatározáshoz a háttér beütésszám is szükséges, elvégeztem mind a két használt alfa kamrán háttér mérést az üres mintatartóval. Itt 200000 másodperces mérési idővel dolgoztam.

Az A_T aktivitás értékét a mérés időpontjában az alábbi módon számoltam az ismert kezdeti aktivitáskoncentrációból:

$$A_T = c_T \cdot m_T \quad (5.3)$$

ahol:

- A_T : Po-209 kezdeti, ismert aktivitása a mintában [Bq]
- c_T : Po-209 aktivitáskoncentrációja a mérés időpontjában [Bq/g]
- m_T : Po-209 hozzáadott tömege [g]

A c_T értékének meghatározásához azonban még egy számításra szükség van, mert a használt oldat ismert aktivitáskoncentrációja a 2005-ös gyártás időpontjában lett megállapítva, mely idő óta eltelt már 17 év. Így az azóta elbomlott polónium izotóp okán ki kell számítani, hogy mekkorára változott a mérés időpontjában az aktivitáskoncentráció az ismert felezési ideje alapján a Po-209-nek. (102 év)

$$c_T = c_{0T} \cdot e^{-\lambda_{Po-209} \cdot t_{Po-209}} \quad (5.4)$$

ahol:

- c_T : Po-209 aktivitáskoncentrációja a mérés időpontjában [Bq/g]
- c_{0T} : Po-209 gyártási referencia aktivitáskoncentrációja [Bq/g]
- λ_{Po-209} : Po-209 bomlási állandója [1/h]
- t_{Po-209} : gyártás óta eltelt időtartam [h]

A c_{0T} értéke 43,83098 mBq/g, mely 0,04383098 Bq/g. A 2005. december 21-es gyártási időpont óta eltelt időt órában Excel táblázatkezelő program segítségével számoltam ki. Minden

egy mintánál feljegyeztem a pontos dátumot, hogy mikor kezdtem el a spektrométeres mérést, és ahhoz a dátumhoz viszonyítottam a 2005-ös időpontot.

Fontos mérési paraméter a használt detektor kimutatási határa. Ennek 95%-os pontossággal való meghatározására a következő képlet alkalmas: [41]

$$D.L. = \frac{2,71 + 4,65 * \sqrt{I_h}}{\eta * t * M} \quad (5.5)$$

ahol:

- D.L.: a detektor kimutatási határ (Bq/g)
- M: a használt minta tömege (g)
- I_h : háttér beütésszám a vizsgált izotópra
- η : detektor hatásfok
- t: mérési időtartam (másodperc)

A detektor két kamrájában a háttérmérés során eltérő értékeket kaptam, így a kimutatási határok is különböztek. Minden esetben a kiértékelésnél jeleztem a spektrumok mentésénél, melyik kamrában lettek vizsgálva. A kalibrációval meghatározott hatásfoka a detektornak 24,3 % volt.

Az 1. kamra kimutatási határa így az átlagosan 1 g-nyi bemért mennyiségre, (melyhez képest 10%-al nagyobb mértékben sose tértem el) 0,735 mBq/g, a 2. kamra minimális kimutatható aktivitáskoncentrációja 0,372 mBq/g volt.

6 Eredmények

6.1 A talajminták Po-210 aktivitáskoncentrációi

A 6.1 táblázatban az általam vizsgált talajminták esetében kapott Po-210 aktivitáskoncentráció értékek szerepelnek.

6.1. táblázat: A talajminták Po-210 aktivitáskoncentrációi

Minta	Aktivitáskoncentráció (Bq/kg)
T1-Veszprém	181,28
T2-Kislőd	30,45
T3-Somló	109,63
T4-Ajka-Padragkút	106,27
T5-Hárskút	543,16
T6-Bakonybél	75,07
T7-Zirc	78,99
T8-Balatonfüred, Koloska-völgy	233,99
T9-Székesfehérvár	156,73
T10-Csángótelep	198,40
T11-Esztelnek	158,24
T12-Tusnádfürdő	162,27

Az eredmények egy kivétellel beleillettek a világszerte kivitelezett méréseknél általánosan tapasztalt 20-240 Bq/kg tartományba. A legmagasabb érték az 5-ös hárskúti mintában lett mérve, 543,16 Bq/kg. A legalacsonyabb eredményt a 2-es pont mintája adta, 30,45 Bq/kg-ot.

A magas eredményű T5-ös minta esetében a tanszéken zajló, a mintavételezés bevezetőjében említett másik mérés adataival összevettem az eredményt. Abban a vizsgálatban gamma-spektrometriás elemzés során meghatározásra került a minta Ra-226 tartalma is, mely a Po-210 előtt helyezkedik el a bomlási sorban és indikálhatna lokálisan az U-238 bomlási sorba tartozó izotópok feldúsulását.

A Ra-226 aktivitáskoncentráció eredménye azonban csak 41 Bq/kg lett, mely nem számít magasnak, beleillik például egy széleskörű új-zélandi kutatás eredményeivel, ahol 27-88 Bq/kg között változtak az eredmények. [42]

Eredmények

Mivel Hárskút település központjától és a közúttól is néhány száz méterre lett a talaj gyűjtve, és esetleges antropogén szennyezés ezen a részen az elhelyezkedésből adódóan szinte kizárható, ezen eredményre csupán mérési hiba tűnik megfelelő magyarázatnak. Ennek pontos megállapításához érdemes lehet a mérési folyamatot elvégezni újra, vagy még egy mintagyűjtést kivitelezni a jövőben.

6.2 A mohaminták Po-210 aktivitáskoncentrációi

A 6.2 táblázatban az általam vizsgált mohák esetében kapott Po-210 aktivitáskoncentráció értékek szerepelnek:

6.2. táblázat: A mohaminták Po-210 aktivitáskoncentrációi

Minta	Aktivitáskoncentráció (Bq/kg)
M1-Veszprém	2525,82
M2-Kislőd	765,16
M3-Somló	666,21
M4-Ajka-Padragkút	448,97
M5-Hárskút	128,71
M6-Bakonybél	665,74
M7-Zirc	1157,94
M8-Balatonfüred, Koloska-völgy	633,99
M9-Székesfehérvár	837,93
M10-Csángótelep	1128,44
M11-Esztelnek	407,87
M12-Tusnádfürdő	682,21
M13-Torjai Büdös-barlang	1031,52

Az eredmények nagyságrendileg és eloszlásilag is beleesnek a korábbi vizsgálatok során kapott tartományokba. A legnagyobb értéket Veszprémbe, az M1-es mérési ponton mértem (2525,82 Bq/kg). A legalacsonyabb eredményt pedig az M5-ös hárskúti mintából kaptam (128,71 Bq/kg). Az 5-ös mérési pont kivételével a mohaminták aktivitáskoncentrációja mindenhol sokkal magasabb, mint a talajmintáké.

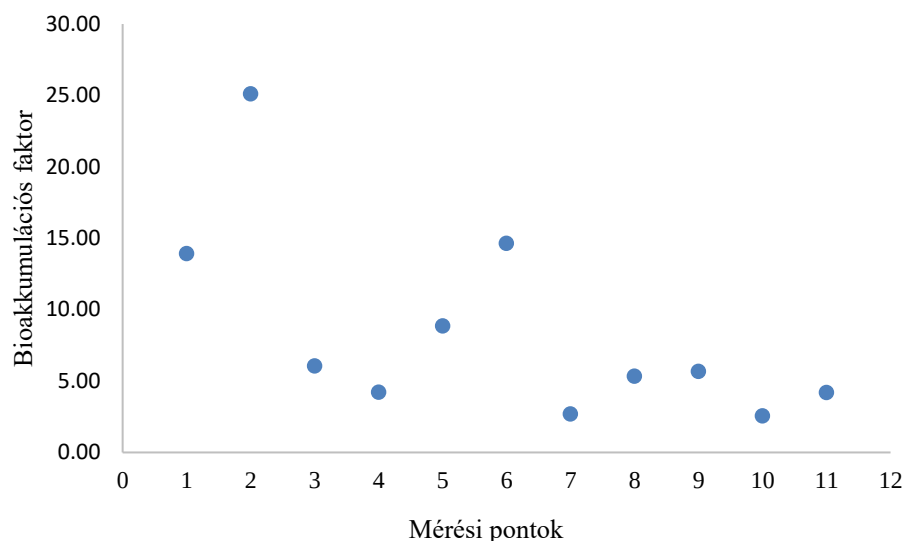
6.3 A moha Po-210 bioakkumulációs faktora

A kapott Po-210 aktivitáskoncentrációk alapján kiszámítottam a moha bioakkumulációs faktorát. Az 5-ös pontnak, a hárskúti mintagyűjtésnek eredményét nem foglaltam bele a táblázatba a mérési hiba valószínűsítése miatt.

6.3. táblázat: A moha-talaj bioakkumulációs faktor kiszámítása

Minta	Moha aktivitáskoncentráció (C_{moha}, Bq/kg)	Talaj aktivitáskoncentráció (C_{talaj}, Bq/kg)	Bioakkumulációs faktor ($C_{\text{moha}}/C_{\text{talaj}}$)
1-Veszprém	2525,82	181,28	13,93
2-Kislőd	765,16	30,45	25,13
3-Somló	666,21	109,63	6,08
4-Ajka- Padragkút	448,97	106,27	4,22
5-Hárskút	128,71	543,16	valószínűsített hiba
6-Bakonybél	665,40	75,07	8,86
7-Zirc	1157,94	78,99	14,66
8- Balatonfüred, Koloska-völgy	633,99	233,99	2,71
9- Székesfehérvár	837,93	156,73	5,35
10- Csángótelep	1128,44	198,40	5,69
11-Esztelnek	407,87	158,24	2,58
12- Tusnádfürdő	682,21	162,27	4,20

A táblázatban feltüntetett arányszámok 2,58 és 25,13 között változnak.



6.1. ábra: Moha/talaj bioakkumulációs faktor értékek az egyes mérési pontokon

A 6.1. ábrán feltüntetett bioakkumulációs faktor eredményeken jól látszódik, hogy nem tapasztalható jellegzetes érték a kapott eredményekben.

Mérésem adatai igazolják korábbi kutatások eredményét, hogy a bomlási sor izotópjainak viselkedése és a mohanövény szerkezete miatt a növény Po-210 aktivitáskoncentrációja kevésbé függ a talaj Po-210 tartalmától, hanem jelentős részben, ha nem szinte egészében a bomlási sor Rn-222 utáni izotópjainak légköri száraz és nedves lerakódásából származik. Emiatt a légköri kibocsátással járó emberi tevékenységek jelentősen befolyásolhatják a mohában mérhető koncentráció értékeket.

6.4 Az eredmények vizsgálata gyűjtési tájegység alapján

Vizsgálva az eredményeket magyarországi és az erdélyi gyűjtési helyszín összehasonlítása alapján, nem látható egységesen, tájegység szerinti általános tendencia.

A bakonyi mohaminták eredményeinek átlaga: 874,03 Bq/kg, az eredmények tartománya 128,71-2525,82 Bq/kg.

A talajminták átlagos aktivitáskoncentrációja, nem számítva bele az 5-ös mérési pont eredményét: 113,02 Bq/kg, az eredmények 30,45-233,99 Bq/kg között változtak.

Az erdélyi mohaminták átlagos aktivitáskoncentrációja: 739,51 Bq/kg, az eredmények tartománya: 407,87-1128,44 Bq/kg.

Az erdélyi talajminták átlagos eredménye: 172,97 Bq/kg, 158,24-198,4 Bq/kg közötti értékekkel.

Az eredményből bármilyen következtetés levonásának komoly korlátja a minták alacsony darabszáma, különösen az erdélyieké. A nagyon alacsony mintaszám ellenére, abból, hogy az

átlagos eredmények jelentős mértékben nem különböznek, (nincs sokszoros differencia), viszont az eredmények tartománya jellemzően széles, főként a bakonyi mérés esetében, feltételezhető, hogy a magasabb értékeket a lokális terepviszonyok, illetve antropogén szennyezés befolyásolhatja, nem tapasztalható regionális, elterjedtebb szennyezés, emelkedettebb aktivitáskoncentráció a mintavételi helyek eredményeinek elhelyezkedése alapján.

Hasonló következtetés levonható például a 2011-es törökországi hőerőmű közelében vizsgált mohafajok esetében is, Két esetben is, azonos mohafajoknál is különböző mérési pontokról, csak néhány kilométer távolságra egymástól másfélszeres differenciát észleltek az aktivitáskoncentráció eredményekben, jellemzően csökkenő tendenciával távolabb az erőműtől. [34]

6.5 Az eredmények vizsgálata gyűjtési hely alapján, bioindikátorként való alkalmazhatóság elemzése

Regionális tendencia ugyan nem felfedezhető, de a számottevő különbségeket több lokális tényező is okozhatja. Mint ahogyan a 2.2 fejezetben említettem, a Rn-222 utáni bomlástermékei az U-238 bomlási sorának könnyen képesek a levegő részecskéihez tapadni, így a légköri terjedést az uralkodó szélirány jelentősen befolyásolja. A mind Magyarországon, mind Erdélyben jellemző északi, északnyugati szél miatt egy esetleges komolyabb mesterséges szennyezőforrás esetén fontos szempont ennek figyelembevétele. [43] [44]

A 4-es padragkúti mérési pont körülbelül 4 kilométerre található az ajkai Bakonyi Erőműtől délkeletre, tehát pont a jellemző szélirányban. Az erőmű jelenleg biomasszával történő tüzeléssel dolgozik, és sokat fordított a környezetvédelemre, például elektrofilter rendszerrel vagy pakura kibocsátás kiküszöbölésével. [45] [46] Érdekes lehet a jövőben széleskörűbb vizsgálatot folytatni az erőmű körül, hogy mindenhol ez a jellemző-e, de a mérési pont moha aktivitáskoncentráció eredménye inkább az alacsonyabb tapasztalt értékek közé esik: 448,97 Bq/kg.

Azért is lehet érdekes más pontok vizsgálata is az erőmű közelében, mert a környezet és a mérési pont maga is kifejezetten erdős az erőműteleptől délebbre, és ahogy a törökországi telep környéki mérés is valószínűsítette az eredmények alapján, a környezet árnyékolása a Po-210 bizonyos, akár élelmiszernek is alkalmas növényekbe való lerakódásának mértékében fontos tényező lehet.

A veszprémi adat kiemelkedő mértéke, a 2525,82 Bq/kg-os eredmény is az előző feltételezésnek való megfelelésre mutat, ugyanis a városnak ugyan egy zöldebb részén, de

tisztáson, aljnövényzet által kevésbé burkolt helyen lett a moha minta gyűjtve. Egyrészt Veszprém a legnépesebb hely a vizsgált pontok közül, másrészt a vizsgált ponttól 400-500 méterre fut, szintén az érkező szél irányában a Veszprém városát kikerülő 8-as számú, nagy forgalmú főút, melyen a mérés időpontjában éppen átfogú felújítási munkálatok zajlottak.

2019-es katar kutató vizsgálta a salak alkalmazásakor a radioizotóp mennyiségét útépitő anyagban, többek között a rádium-226-ra is magas, minden esetben 200 Bq/kg feletti aktivitáskoncentrációt mértek. [47] Az építőanyag és a szennyezése is tehát komolyabb izotóp forrást jelenthet a környezetnek, és az elhelyezkedése alapján az 1-es pontnak feltételezhető, hogy ennek a hatása jelentkezhessen a mohamintában is. A talajminta aktivitáskoncentrációja is a magasabb tartományban volt ezen a ponton.

A legalacsonyabb aktivitáskoncentráció eredmény a hárskúti, 5-ös számú moha mintában lett mérve, 128,71 Bq/kg. Térképre helyezve a pontot, és összevetve a többivel, ez megfelel a környezet hatásának eddig vázolt feltételezett jellemzőivel. A moha minta sűrű aljnövényzetből származott, Hárskúton számottevő környezetet befolyásoló szennyező tényező nem jellemző, a legmagasabban elhelyezkedő falu a Bakonyban kis forgalmú út mentén, a mintagyűjtési pont is 500 méterre található az autópályától és a falu központjától.

A zirci 7-es mérési pont 1157,94 Bq/kg-os, így az átlagosnál magasabb aktivitáskoncentráció eredményében, (mely a veszpréminek ugyan így is csak a fele) is szerepet játszhatott környezeti tényező. A pont kb. 4 kilométerre délre helyezkedik el a várostól, de a bevezető úttól, mely a 8-as út felől érkező forgalmat viszi be Zircbe, csak kb. 100 méterre. A mérési pont környezete egy nagyobb tisztás volt, kevésbé sűrű aljnövényzettel, hiányzott a valószínűsített árnyékoló hatás. A korábban ismertetett 2003-as olaszországi vizsgálata a moháknak is feltételezi, hogy az autópályák közelsége befolyásolta ott több minta aktivitáskoncentrációját. [28]

A magyarországi eredmények közül a 3. legmagasabb a 9-es pont is növényzet és erdő által kevésbé takart területről származik. Ugyan Székesfehérvár nem a jellemző érkező szél irányában található, de több nagy forgalmú út, (például a 7-es számú főút is) néhány 100 méter távolságban körülvéleli az Aranybulla emlékhelyet, ahonnan származik a minta. Érdekes lehet több mérési pontot is vizsgálni Székesfehérváron a jövőben, a város ipari zónájának közelében is, itt az emberi tevékenység közelsége mekkora hatással bír a mohák izotóptartalmára.

7 Összefoglalás

Összességében a mérési eredmények alapján látható, hogy a dunántúli és erdélyi mohaminták aktivitása is magasabb a talajéhoz és más növényekéhez képest, megerősítve a más országban elvégzett korábbi kutatások tapasztalatait. A mérési eredmények egy talajminta kivételével beleestek a világszerte tapasztalt jellemző értékekbe.

A T5-ös talajminta eredményénél pedig, mely a kivételt jelentette mérési hibát feltételezek, mert más adatok nem támasztják alá az ekkora kiugrást, a Po-210 bomlási sorában korábban található Ra-226 izotópnak nem lett mérve kiugró értéke ezen mintában, és az elhelyezkedés, illetve a mohaminta eredménye sem mutatott esetleges levegőből eredő lokális szennyezés lehetőségére.

Az adatok alapján feltételezhető, hogy a talaj és a moha aktivitáskoncentrációja között nem jellemző egy általános arányszám, a moha felépítése miatt feltételezhetően sokkal inkább a légkörből származó izotóp megkötéséből akumulálódhat a Po-210 tartalom a növényben. Így a légköri radioaktív szennyezés indikációs vizsgálatára alkalmas lehet a tapasztalt eredmények alapján. Viszont a talajból származó szennyezés monitorozására az eredmények alapján nem tűnik használhatónak.

A mohaminták eredményekben nem tapasztaltam regionális korrelációt, mind az erdélyi, mind a bakonyi eredmények aktivitáskoncentrációi is széles tartományban mozogtak. Ez megerősíti a korábbi kutatások eredményeit, hogy indikációs hatás kisebb szennyezőforrás esetén lokálisan, néhány kilométeres tartományban tapasztalható.

Mérési eredményeim több helyen is ezen néhány kilométeres körzetbeli alkalmazhatóságnak megfelelnek.

Több esetben is emelkedett aktivitáskoncentrációt tapasztaltam emberi tevékenység közelében, a legmagasabb eredmény egy ideiglenes környezetterhelő forrás, nagymértékű útépítés közvetlen közelében lett a mohában mérve. A legalacsonyabb eredmény az elhelyezkedés alapján ezen felvázolt antropogén hatásoktól legtávolabb esett.

Összességében tehát az általam tapasztalt értékek több korábbi mérési feltételezés eredményeinek, tendenciáinak megfelelnek, mely arra mutat, hogy egy kisebb légköri szennyezésnél lokális mértékben a moha jól használható indikátor növénynek a Po-210 és így az urán-238 bomlási sorának izotópjainak nyomon követésére.

Irodalomjegyzék

Az internetről gyűjtött források megtekintése: 2022.11.02.

- [1] Brown, Susan A. (2020). The Aqueous Chemistry of Polonium and the Practical Application of its Thermochemistry || Polonium.
- [2] Mester András, Radnóti Katalin: A polónium története, Nukleon 2012. március V. évf. (2012) 104
- [3] Ram, Rahul; Vaughan, James; Etschmann, Barbara; Brugger, Joël (2019). The aqueous chemistry of polonium (Po) in environmental and anthropogenic processes. Journal of Hazardous Material
- [4] Eric Ansoborlo. Poisonous polonium. Nature Chemistry 2014, 6 (5)
- [5] Zhichao Lin; Zhongyu Wu (2009). Analysis of polonium-210 in food products and bioassay samples by isotope-dilution alpha spectrometry. , 67(5), 907–912.
- [6] <https://www.livescience.com/39452-polonium.html>
- [7] Villa, I.M.; Bonardi, M.L.; De Bièvre, P.; Holden, N.E.; Renne, P.R. (2016). IUPAC-IUGS status report on the half-lives of ²³⁸U, ²³⁵U and ²³⁴U. Geochimica et Cosmochimica Acta, 172(), 387–392.
- [8] <https://world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/uranium-resources/the-cosmic-origins-of-uranium.aspx>
- [9] Breitner Dániel, Török Szabina és Márton István: Globális urántartalékok földtani és mennyiségi értékelése: Nukleon 2012. március V. évf. (2012) 103
- [10] K. Murray Matthews; Chang-Kyu Kim; Paul Martin (2007). Determination of ²¹⁰Po in environmental materials: A review of analytical methodology. , 65(3), 267–279.
- [11] Bertil R.R. Persson; Elis Holm (2011). Polonium-210 and lead-210 in the terrestrial environment: a historical review. , 102(5), 420–429.
- [12] Bertil R.R. Persson: ²¹⁰Po and ²¹⁰Pb in the Terrestrial Environment. CAES Volume 2, Issue 1 Feb. 2014 PP. 22-37
- [13] Robin B. McFee; Jerrold B. Leikin (2009). Death by Polonium-210: lessons learned from the murder of former Soviet spy Alexander Litvinenko. , 26(1), 0–67.
- [14] Ansoborlo, Eric; Berard, Philippe; Den Auwer, Christophe; Leggett, Rich; Menetrier, Florence; Younes, Ali; Montavon, Gilles; Moisy, Philippe (2012). Review of Chemical and Radiotoxicological Properties of Polonium for Internal Contamination Purposes. Chemical Research in Toxicology, 25(8), 1551–1564.
- [15] Mai H. Le (2007). Polonium 210, exposed. 3(2), 82–84.
- [16] Harrison, J., Leggett, R., Lloyd, D., Phipps, A., & Scott, B. (2007). Polonium-210 as a poison. Journal of Radiological Protection, 27(1), 17–40.

- [17] Scott, Bobby (2007). Health Risk Evaluations for Ingestion Exposure of Humans to Polonium-210. Dose-Response, 5(2), 94–122.
- [18] https://fizipedia.bme.hu/images/1/10/Alfa_spektroszk%C3%B3pia.pdf
- [19] Gamma-spektrometriai vizsgálatok HPGe félvezető detektorral-Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézet, mérésleirat
- [20] T. Karali; S. Ölmez; G. Yener (1996). Study of spontaneous deposition of ^{210}Po on various metals and application for activity assessment in cigarette smoke. , 47(4), 409–411.
- [21] H Narita, K Harada, W C Burnett, S Tsunogai, W J McCabe (1989). Determination of ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po in natural waters and other materials by electrochemical separation. Talanta, 36(9), 925–929.
- [22] Kong, X., Yin, L., & Ji, Y. (2021). Simultaneous determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in seafood samples using liquid scintillation counting. Journal of Environmental Radioactivity, 231, 106553.
- [23] https://www.iaea.org/sites/default/files/faqs_2006_-_polonium-210.pdf
- [24] http://www.jgyph.hu/mentorhalo/tananyag/Biologia/421_a_mohk_jelentsebb_rendszertani_csoportjai.html
- [25] <https://www.arcanum.com/hu/online-kiadvanyok/pannon-pannon-enciklopedia-1/a-magyarsag-kezikonyve-2/noveny-es-allatvilag-1E2/viragtalan-novenyeink-244/mohak-25D/>
- [26] Thöni, L., Schnyder, N., & Krieg, F. (1996). *Comparison of metal concentrations in three species of mosses and metal freights in bulk precipitations. Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 354(5-6), 703–708.
- [27] Steinnes E, Johansen O, Røyset O, Ødegård M (1993) Environ Monit Assessm 25: 87–97
- [28] Aceto, M., Abollino, O., Conca, R., Malandrino, M., Mentasti, E., & Sarzanini, C. (2003). The use of mosses as environmental metal pollution indicators. Chemosphere, 50(3), 333–342.
- [29] Persson, B. R. R., & Holm, E. (2011). Polonium-210 and lead-210 in the terrestrial environment: a historical review. Journal of Environmental Radioactivity, 102(5), 420–429.
- [30] Karunakara, N., Avadhani, D.N., Mahesh, H.M., Somashekarappa, H.M., Narayana, Y., Siddappa, K., 2000. Distribution and enrichment of Po-210 in the environment of Kaiga in south India. J. Environ. Radioact 51, 349e362.
- [31] Al-Masri, M. S., Mamish, S., Al-Haleem, M. A., & Al-Shamali, K. (2005). Lycopodium cernuum and Funaria hygrometrica as deposition indicators for radionuclides and trace metals. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 266(1), 49–55.
- [32] Beks, J.P., Eisma, D., van der Plicht, J., 1998. A record of atmospheric ^{210}Pb deposition in The Netherlands. The Science of the Total Environment 222, 35e44.
- [33] Delfanti, R., Papucci, C., Benco, C., 1999. Mosses as indicators of radioactivity deposition around a coal fired power station. The Science of the Total Environment 227, 49e56.
- [34] Sert E, Uğur A, Özden B, Sas, MM, Camgoz B (2011) Biomonitoring of ^{210}Po and ^{210}Pb using lichens and mosses around coal-fired power plants in Western Turkey. J Environ Radioact 102:535–542
- [35] https://www-pub.iaea.org/mtcd/publications/pdf/trs472_web.pdf

- [36] Elemental concentrations and soil-to-moss transfer factors of radionuclides in the environment of North Kosovo and Metohija Gulan Ljiljana, Jakšić Tatjana, Milenković Biljana, Stajić Jelena
- [37] <https://www.ortec-online.com/products/radiochemistry-health-physics-research-industrial/alpha-spectroscopy/spectrometers/alpha-suite>
- [38] <https://tudastar.mk.uni-pannon.hu/anyagok/31-Sugarvedelemlerese.pdf>
- [39] http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Po-209_tables.pdf
- [40] http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Po-210_tables.pdf
- [41] Currie, Lloyd A. (1968). Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry. *Analytical Chemistry*, 40(3), 586–593. doi:10.1021/ac60259a007
- [42] Pearson, A. J., Gaw, S., Hermanspahn, N., Glover, C. N., & Anderson, C. W. N. (2019). Radium in New Zealand agricultural soils: Phosphate fertiliser inputs, soil activity concentrations and fractionation profiles. *Journal of Environmental Radioactivity*, 205–206, 119–126.
- [43] The Wind Regime of Romania – Characteristics, Trends and North Atlantic Oscillation Influences Alfred Vespremeanu-Stroe , Sorin Chieval , Florin Tatui, *Forum geografic. Studii și cercetări de geografie și protecția mediului*, Volume XI, Issue 2 December 2012, pp. 118-126 (9)
- [44] https://www.met.hu/eghajlat/magyarorszag_eghajlata/altalanos_eghajlati_jellemzes/szel/
- [45] <https://www.veolia.hu/hu/ajkai-eromu>
- [46] <http://www.bakonyibioenergia.hu/baertweb/index.php?module=page&name=kornyezetvedelem>
- [47] Al-Kawari, M. S., & Hushari, M. (2019). Doses and radiation risks estimation of adding steel slag to asphalt for road construction in Qatar. *Construction and Building Materials*, 228, 116741.