

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem
Nukleáris Technikai Intézet

Hosszú felezési idejű radionuklidok viselkedésének
tanulmányozása a talaj-növény rendszerben

TÉZISFÜZET

Kabai Éva

Témavezetők:

DR. ZAGYVAI PÉTER DR. VAJDA NÓRA

Konzulens:

DR. LÁNGNÉ LÁZI MÁRTA

2003

CÉLKITUZÉSEK

A radionuklidok viselkedésének ismerete a sugárvédelem alapvető feladata azért, hogy megismerhessük a radioaktív izotópoknak tulajdonítható hatásokat, úgy a sugáregészségügy, mint a környezetvédelem szempontjából.

Doktori munkám során azon hosszú felezési idejű radionuklidok tanulmányozásával foglalkoztam, amelyek az emberi szervezetbe juthatnak, és ott akkumulálódhatnak. Ehhez mind az egyre nagyobb teret nyitó elméleti környezeti terjedésmodellezés, mind a radiokémiából merített analitikai módszerek nyújtottak segítséget.

ALKALMAZOTT MÓDSZEREK

Az elméleti modellezés terén, az áttekintett szakirodalom lehetőséget adott arra, hogy betekintést nyerhessek a környezeti terjedési modellezésbe. Megismerkedtem a terjedésben szerepet játszó folyamatok leírásának módjával, illetve ehhez szükséges, Magyarországon fellelhető adatbázissal, amely a modell beviteli paraméter-értékeit szolgáltatja. Áttekintettem a főbb modell-validálási eljárásokat ill. validálási tanulmányokat.

Ennek megfelelően - egy rekeszes szerkezetű modell felépítésére alkalmas program segítségével - célom egy átfogó és ugyanakkor alapos modell kidolgozása volt élelmiszernövények okozta dózis becslésére. A modellszimulációhoz ¹³⁷Cs-ot (ill. ¹³⁴Cs-ot a validáláshoz) és salátát választottam. Ennek megfelelően modelleztem a növényi tápanyag szempontjából fontos szennyeződési útvonalakat, a radioaktív kihullástól kezdődően az élelmiszernövényen keresztül, egészen az emberig. A felállított modell magába foglalja a kihullás utáni talajbeli migrációt, a növény általi gyökérminti felszívást, valamint a növényfelületi közvetlen kiülepedést illetve másodlagos kiülepedést a rezuszenziót követően.

A kísérleti munka tárgyát azok a hosszú felezési idejű mesterséges radionuklidok képezték, amelyek a környezeti szivárgásokat eloszór jelezhetik, nagy mobilitásuknak köszönhetően. A ¹²⁹I és ⁹⁹Tc meghatározásának nagy jelentősége lehet akkor, ha egy véletlenszerű kikerülést követően az izotópok terjedési útvonalait akarjuk megfigyelni a környezetben. Hosszú felezési idejük miatt tartósan megnövelik környezetük radiotoxicitását ott, ahol megjelennek.

Mint ahogyan az az irodalmi áttekintésből is kiderült, a meghatározási módszerek gyakorta bonyolultak, nehezen megvalósíthatók, időigényesek, nagyobb mennyiségű mintát igényelhetnek.

Eme aspektusokat megkerülni kívánó módszert fejlesztettem ki, egy összetett eljárás keretében, amellyel mindkét nuklidot ugyanazon aliquot mintából lehet meghatározni.

A jódzotóp feldolgozására jellemző forró-savas desztillációs eljárást (esetleges elokonzentrálással) kombináltam a technécium szelektív elválasztására alkalmas TBP alapú szerves extrakcióval.

Az összetett eljárás kidolgozását számos radiokémiai modellkísérlet előzte meg, amely egyik vagy másik izotóp meghatározásához tartozó kitermelés javítását célozta meg.

ÚJ TUDOMÁNYOS EREDMÉNYEK

1. Olyan környezeti terjedési modell készítése, ami az élelmiszernövények minden szennyeződési útvonalát figyelembe veszi.

A felállított modell eredményeként az inkorporált aktivitást becsültem. Ez, 1 MBq/m^2 ^{137}Cs kihullás esetén, feltételezve, hogy a növényt kifejlett szakaszában éri a szennyezés, mintegy $1000\text{-}2000 \text{ Bq/kg}$ saláta, ami napi $0,2 \text{ kg}$ salátafogyasztással számolva figyelembe véve a szervezetből való kikerülést is, $\sim 2 \text{ mSv/év}$ lenyelési dózissal felel meg egy felnőtt esetén. Amennyiben a szennyeződés bekövetkezése és a fogyasztás pillanata között eltelt idő meghosszabbodik, ez a dózis a folyamatok időbeli változásának megfelelően csökkenni fog.

2. A modell beviteli paramétereinek érzékenység vizsgálata

A modell alkalmazhatósága jól értékelhető paraméter érzékenységi vizsgálattal. Munkám során teljes körű (minden paramétert átfogó) érzékenységi vizsgálatot végeztem. Az érzékenység vizsgálatok alanya az emberi szervezetet megjelenítő „HUMAN” rekesz, ami a modell végeredményét szolgáltatja. Két különböző módszert alkalmazva, más-más megvilágításban volt megfigyelhető a modell.

Az első módszer segítségével egyforma relatív szórású ($\pm 10 \%$) paramétereket feltételezve vizsgáltam a végeredmény bizonytalanságát. Ebből kiderült, hogy a napi fogyasztás paramétere (cons) okozza a legnagyobb változást, majd azt követően az igen ritkán mért növényi felületi sűrűség (Bio) kap kitüntetett szerepet. Emiatt ezen a ponton a modell igen-igen bizonytalan.

A második módszerrel, a szenzitivitás index (SI) segítségével osztályoztam az input-paramétereket. Minél nagyobb a szenzitivitás index értéke, a paraméter annál nagyobb befolyással van az eredmény bizonytalanságára. A második módszer alapján is a napi fogyasztás (cons) a legérzékenyebb (SI=135), ezt követi a meteorológiai felezési idő (t_{h_w}) (SI=133) valamint a talaj-talajvíz megoszlási hányados (K_D) (SI=88),

és a növényi átviteli tényező (T_F) ($SI=64$). Érzékeny a modell még a növényi felfogási tényezőre (α) ($SI=66$) illetve a növényi termésmennyiségre (B) ($SI=29$).

Pontosabb meghatározása az előzőekben felsorolt paramétereknek feltétele a precíz becslésnek.

Kiseb befolyással bírnak a gyökérszóna-mélység, talajporozitás, talajszurúság, hidraulikai gradiens ($SI= 1-10\%$) értékei.

Monte Carlo szimulációt alkalmaztam, hogy a paraméterek értékeinek típuseloszlását megállapítsam. A leggyakoribb eloszlásfüggvénynek a normális eloszlás adódott, majd az egyenletes és a lognormális, ritkábban a gamma, béta, háromszög és Weibull eloszlás.

A szimulált eredmények szórását illetően elmondhatjuk, hogy az nem egységes a modell előrehaladása során, ami azt jelenti, hogy az egyes rekeszekhez időben különböző mértékű szórás tartozik. A különböző rekeszek becslött aktivitás-koncentráció értékeit más-más bizonytalanság terheli. A legnagyobb szórása a „HUMAN” rekesznek van ($\pm 27-53\%$), ami természetes, tekintettel arra, hogy a terjedés előrehaladtával a befolyásoló paraméterek száma is növekszik.

Minden modell megbízhatóságát igazolni kell. Ez rendszerint modellvalidálással történik, amit gyakorlati eredményekkel való összehasonlítással valósítottam meg. A validáláshoz a modellt a gyakorlatnak megfelelően módosítottam úgy, hogy a ^{134}Cs -al végzett szennyezési kísérlet csak a talajt érintette, tehát felületi szennyezés a növényre nézve nem történt.

A gyakorlati és számított eredmények egyezése jó, mintegy 30 %-os eltérés adódik. Ezt az eredményt jónak tekintjük, tekintettel a mérési paraméterek és adatok kis számára. A validálást, rendszerint optimalizálás követi, ami a validált modell paraméterértékeinek optimális beállítását jelenti, a mért és számolt eredmények közti különbség minimalizálására. Itt az optimalizálás nem kivitelezhető, mert ez nagyobb számú mérési adat ismeretét feltételezi. Mindemellett a validálásból kiderült, hogy a modell képes arra, hogy viszonylag pontos prognosztizálást szolgáltatson akut kikerülés folytán szennyezett élelmiszerek szennyeződésére ill. a fogyasztásukkal szerzett többletdózis számítására.

3. A ^{129}I meghatározási módszer fejlesztése környezeti szintű minták esetén

A ^{129}I meghatározására amúgy ismert, nagy érzékenységu neutron aktivációs analitikai módszert olyanképpen módosítottam, hogy az jó hatásfokkal működjön akkor is, ha a várt aktivitás alacsony. Ennek konkrét esete a környezeti minták mérése. Ilyenkor gondot okoz a minták feltárhatósága, ill. a jód kiűzése a szerves mátrixból. A kitermelés javítását szolgálta a speciális töroszerszám bevezetése

(amellyel a besugárzott ampullákat kevesebb veszteséggel bontani lehetett) vagy a megfelelő reakciósebességek betartása főleg a redox reakcióknál.

A módosított eljárás részét képezi az is, hogy nem más esetekben használt nyomjelzővel követtem a kitermelési és hatásfok értékeket, hanem a kezdetben a mintákhoz hozzáadott természetes jódot izotóp szolgált ezekre a célokra.

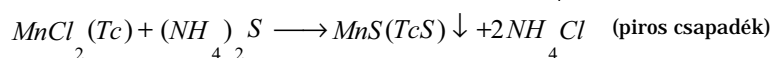
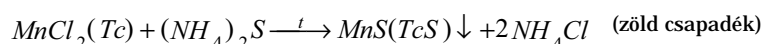
A módosított módszerrel sikerült azt elérni, hogy az eredetileg 5-20 %-os kémiai kitermelések jelenleg 50 % fölött mozognak, tehát nagymértékű javulás következett be. A módszer egyaránt alkalmazható kis és közepes aktivitású minták esetében, különböző (kémiai) bonyolult mátrixok esetében is. Ezt támasztják alá a környezeti talajminták eredményei is. Ebben az esetben is a kitermelések kedvezőek, tekintettel a soklépéses analitikára, amely előzetes és utólagos kémiai feldolgozást igényel ill. aktivációs lépést is magába foglal.

A jódotizotópot különböző típusú mintákból határoztam meg, ami egyben különböző szintű aktivitás-koncentrációkat is jelentett. Így paksi bepárlási maradékokra a számolt aktivitás 10-100 mBq/L, ugyanonnan származó használt ioncseréző gyantára 10 Bq/kg nagyságrendű. Környezeti minták esetén a tipikus aktivitás koncentrációk: biológiai (pajzsmirigy) anyagban 67 mBq/kg, talajban 3 mBq/kg, környezeti vízmintáknál a detektálási határ alatt ($L_D = 0,5 \mu\text{Bq/L}$).

A radiokémiai meghatározások eredményeinek validálása nemzetközi összemérési gyakorlatban történt, mely igazolta, hogy a módszer megfelelő a ^{129}I meghatározására.

4. A ^{99}Tc izotóp meghatározása többtípusú mintából

A ^{99}Tc jelenlétének kimutatását különböző típusú minták esetében végeztem el. A feldolgozott mintákat előbb roncsolásnak kell alávetni, majd tributil-foszfátos (TBP) szerves extrakciót, illetve TEVA oszlopos kromatográfiás elválasztást alkalmaztam tisztítási lépésként. Ezek után a megtisztított Tc frakciót MnS-dal vagy ZrS₂-dal együtt lecsaptam, majd a mintát LSC mérőrendszerben mértem meg. A MnS-os leválasztás esetében, jó kitermelés csak a zöld módosulat esetén nyerhető, a piros módosulattal kapott kitermelés értékek jóval alacsonyabbak.



A kapott eredmények arra utalnak, hogy ezt a módszert sikeresen lehet alkalmazni különböző típusú minták esetében, jó kitermeléssel (> 50 %) anélkül, hogy drága anyagokat használnánk, mint például a rénium. A kapott kitermelés jónak tekinthető, hiszen ha az eljárás minden egyes lépését 90 %-os kitermeléssel végeznénk el, a módszer akkor sem haladna meg az 50 %-ot.

A próbaként elemzett használt ioncseréző gyantára kapott aktivitás mintegy 13 Bq/g. Más mintában nem volt kimutatható a technécium, mert a tipikus koncentrációk a detektálási határ közelében mozognak, ami biológiai mintára 0,05 Bq/g, környezeti mintára 0,1 Bq/g.

Tekintettel a referenciaanyagok hiányára, a módszer kitermelés-értékeit az egyes lépéseknek megfelelő modellkísérletek szolgáltatták.

A módszer validálását ^{99m}Tc -mal jelzett modellkísérletekkel végeztem úgy, hogy a nyomjelzőt a kísérlet elején adtam a valódi (általában környezeti) mintákhoz. Ebben az esetben, a visszanyert ^{99m}Tc aktivitás értékek, 30-50 %-os kitermelés értékeket mutatnak. Ugyanitt mutattam be egy újabb együttlécsapásos lépés kidolgozását ZrS_2 -ot felhasználva, jó kitermeléssel (> 90 %) Mint ahogyan azt vártuk, ^{99}Tc ezekben a mintákban nem volt kimutatható.

5. Összetett módszer kidolgozása a ^{129}I és ^{99}Tc egyidejű meghatározása ugyanabból a mintatérlegetből

Az egyedi módszerek alapján végül kidolgoztunk egy olyan összetett radiokémiai eljárást, amely segítségével a ^{129}I és a ^{99}Tc izotópot szimultán tudjuk meghatározni ugyanabból a mintatérlegetből.

Az eljárás sikeresen kombinálja a jó meghatározásokra már ismert forró savas feltárási desztillációs eljárást a technéciumra jellemző TBP-s szerves extrakcióval, TEVA extrakciós kromatográfiával illetve MnS-os vagy ZrS_2 -os együttlécsapással. Bebizonyosodott, hogy az összetett módszer jó hatásfokkal alkalmazható különböző típusú minták esetében.

A komplex radioanalitikai eljárások célja, hogy minél több komponenst lehessen ugyanabból a mintából meghatározni, minél nagyobb hatásfokkal, minél kevesebb veszteséggel. Elmondható, hogy a kidolgozott összetett módszer jól illeszkedik egy ilyen komplex radioanalitikai vizsgálathoz, amelyben a jó és technécium izotópot más izotópokkal együtt határozzuk meg. Ezek főleg a ^{90}Sr - ^{90}Y , ^{63}Ni , ^{59}Ni , ^{60}Co , valamint az urán és transzurán izotópok: ^{238}U , ^{228}Th , ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am lehetnek.

Az összetett módszert alkalmaztam többtípusú minta elemzésére.

Ezzel a módszerrel meghatározható a jó és technécium aktivitás-koncentrációja úgy radioaktív hulladékmintákban, atomeromuvi üzemanyagciklus melléktermékeiben, mint környezeti és biológiai mintákban egyaránt. A nehézséget leggyakrabban a minta mátrixhatása okozza, de elmondhatjuk, hogy a módszer alkalmas akár környezeti szintű aktivitások meghatározására, és ezáltal a környezeti szivárgások korai jelzésére.

Az összetett módszer során, a két izotópot (elemet) sikerült egymástól majdnem teljesen (95%) elválasztani anélkül, hogy az összkitermelést az egyedi módszerhez képest, a két izotópra különösebben rontanánk (~50-50 %). A kitermelés csak ritkán csökken ez alá az érték alá, bonyolultabb mátrixok esetében.

Érzékenységet tekintve az összetett ill. az alkalmazott egyedi módszerek kiemelkednek más alkalmazott módszerek közül. A detektálási határ a jódtól 0,5 $\mu\text{Bq/L}$ és 100 mBq/L ill. mBq/kg . között mozog és a feldolgozott minta fajtájától, valamint a feldolgozási (aktivációs) körülményektől függ. Technéciumra az LSC mérés technikával elért detektálási határ kb. 0,05 Bq/g .

TÉZISPONTOK

A munkám során elért új eredményeket a következő tézispontokban foglalom össze.

1. TÉZIS

Olyan, a növényi fogyasztásból származó dózis becslésére alkalmas környezeti modellt készítettem, amely figyelembe veszi az élelmiszernövényként fogyasztott növény valamennyi szennyezési lehetőségét: a közvetlen kiülepedést, a gyökérmenti felszívást és a reszuszpenziót követő másodlagos kiülepedést. A modell bemeneti adatait a kihullás szolgáltatja, és a modellezett folyamat az emberi szervezetbe lenyeléssel történő bekerülésig tart. A modellszámítás végeredménye az ember szervezetében fennálló aktivitás-koncentráció illetve a végeredményhez tartozó bizonytalanság. Eloszményként a bekerült (inkorporált) aktivitás-koncentrációt határoztam meg, majd egy megfelelő kikerülési függvény segítségével becsültem a szervezetben fennmaradó aktivitás-koncentrációt.

A modell validálását gyakorlati eredményekkel való összehasonlításban végeztem el. Ennek alapján elmondható, hogy a modell megbízhatósága jó, jövőbeni felhasználását tekintve, könnyen alakítható bármilyen környezeti terjedési probléma megoldására.

2. TÉZIS

Elvégeztem a modell paramétereinek érzékenység-vizsgálatát és ennek alapján a paramétereket osztályoztam.

Az érzékenység vizsgálatot két módszerrel végeztem:

- ◇ az input paraméterek ± 10 %-os bizonytalanságát feltételezve
- ◇ a paraméterek létező értékintervallumában - a szenzitivitás index (SI) meghatározásával.

Ezeket felhasználva a paramétereket osztályoztam a szenzitivitás indexük alapján, hogy a további tanulmányokban a nagy szenzitivitás indexszel jelentkező paraméterek meghatározására nagyobb hangsúlyt fektessünk.

Monte Carlo szimulációval megállapítottam a paraméterek jellegzetes eloszlásfüggvényeit.

3. TÉZIS

Egyszerűsített, de validált eljárást dolgoztam ki a ^{129}I meghatározására, a már létező módszereket alapul véve, jó kitermeléssel. A nagy érzékenységu módszer forró savas desztillációs elválasztást követően neutron aktivációs analitikán alapszik, többféle mátrixból kiindulva. A meghatározás nyomjelzo nélkül történik gamma-spektrometriás méréssel, jó d hordozót használva a kitermelés számításához. A módszerrel elért legalacsonyabb detektálási határ $0,5 \mu\text{Bq/L}$.

4. TÉZIS

Kidolgoztam egy soklépéses tisztítási eljárást, amely alkalmas a ^{99}Tc izotóp nagy érzékenységu és pontosságú meghatározására akár környezeti szintu minták esetében is. A módszer TBP alapú szerves extrakció utáni TEVA Spec kromatográfiás tisztítási lépést tartalmaz. Végezetül szulfid alapú együttlesapást iktatva be, a mintát LSC méroberendezésben megmérhetjük.

5. TÉZIS

Összetett analitikai eljárást dolgoztam ki ^{129}I és ^{99}Tc szimultán meghatározására, amelynek segítségével a ^{129}I és a ^{99}Tc izotópot ugyanabból az aliquot mintából tudjuk meghatározni. Az eljárás kombinálja a jó d meghatározásokra jól ismert forró savas feltárési desztillációs eljárást a technéciumra jellemzo TBP-s szerves extrakcióval, illetve MnS-os vagy ZrS₂-os együttlesapással. Bebizonyosodott, hogy az összetett módszer jó hatásfokkal alkalmazható különböző típusú minták esetében.

Budapest University of Technology and Economics
Institute of Nuclear Techniques

**Study on behavior of long-lived radionuclides in the
soil-plant system**

Eva Kabai

Scientific Supervisors:

DR. PÉTER ZAGYVAI DR. NÓRA VAJDA

Further consultant:

DR. MÁRTA L. LÁZI

2003

SUMMARY

The determination of the behavior of long-lived radionuclides in the environment is one of the main duties of radiation protection. This goal can be achieved by two different ways: - simulating the transport of contaminants through environment by theoretical (computer) modelling;

- effectively measuring the contaminants in different ecosystems.

The goals of this work are summarised in the following points:

- to develop a comprehensive but profound theoretical model to simulate the migration of contaminants through food-chain. The source term of this model is the fallout and the results obtained are the activity-concentration values in human due to contaminated plant consumption.
- to develop simpler methods than the existing ones for determination of distinguished long-lived radionuclides which can easily migrate through environmental media like ^{129}I or ^{99}Tc .

THESES

1. Elaboration of a migration model, that allows the estimation of effective ingestion dose by contaminated plant consumption (as vegetable), beginning with the fallout through food-chain to human. The model includes the following processes: direct deposition of radioactive species to plant surface, root uptake, and resuspension. The result of the modelling is the variation of activity-concentration in human body together with proper uncertainty analysis.
2. Sensitivity analysis of the parameters using two different methods:
 - Attributing a uniform ($\pm 10\%$) relative uncertainty for each parameter;
 - Determining the sensitivity index (SI) in the existing range of the parameters. Then the parameters were categorised using these SI values in order to fix the most uncertain ones, which need more accurate determinations in the future.
3. Development of validated method for the determination of ^{129}I . Taking existing methods as a basis a highly sensitive method was developed using hot acidic distillation combined with neutron activation analysis and organic extraction purification. Finally the purified iodine fraction is measured by gamma-spectrometry.
4. Development of a multi-step purification procedure for the determination of ^{99}Tc from different type of samples. The method combines the TBP extraction step with TEVA Spec extraction chromatography and liquid scintillation counting (LSC) of co-precipitated technetium as sulphide.
5. Development of a combined procedure for simultaneous determination of ^{129}I and ^{99}Tc from the same aliquot sample. In the combined procedure the hot acidic distillation characteristic for iodine separation was combined with TBP based purification of technetium fraction continued with extraction chromatography and co-precipitation with MnS or ZrS_2 in order to obtain high sensitivity for both radionuclides. It has been proven that the combined procedure is able to determine both nuclides from the same aliquot sample with efficiencies about 50% and limit of detection about $\mu\text{-mBq/L}$ or mBq/kg for iodine and 0.05 Bq/g for technetium.

AZ ÉRTEKEZÉssel KAPCSOLATOS PUBLIKÁCIÓK /RELATED PUBLICATIONS/

Tudományos közlemények /Papers/:

1. Kabai É., Vajda N., Gaca P. -Simultaneous determination of radioactive halogen isotopes and ^{99}Tc ,
Czechoslovak Journal of Physics, Vol. 53., 2003, Suppl. A, A181-188
2. Kabai É., Zagyvai P., Beliczay I. -Determination of iodine content of walnut samples and their importance (in Hungarian)
Forestry Journal, July-August 2002, Budapest, Hungary
3. Kabai É., Zagyvai P., Lázi M., Oncsik M. -Radionuclide migration modelling through the soil-plant system
The Science of the Total Environment (bírálatra kiadva)

Konferencia kiadványok /Conference proceedings/:

4. Kabai Éva -Examination of radioactive contaminated soil-plant system
RODOSZ- The first conference of Hungarian PhD students, Cluj, Romania
11-12 March 2000. (in Hungarian)
5. Zagyvai Péter, Kabai Éva, Benedekfi Örs -PhD theses on various topics of radiation protection elaborated at the Institute of Nuclear Techniques TUB
25th Annual Meeting on Radiation Protection, 30 May-2 June, 2000,
Balatonkenese, Hungary
6. Kabai É., Zagyvai P. -Prediction of radioactivity concentration in plants
26th Annual Meeting on Radiation Protection, May 2-4., 2001,
Balatonkenese, Hungary
7. Zs Szanto, Z Szucs, E Svingor, M Molnar, L Palcsu, I Futo
N Vajda, Zs Molnar, E Kabai -Determination of ^{129}I in low level radioactive waste
by two different methods
International conference- Nuclear Energy in Central Europe 2001,Portoroz,
Slovenia, 10-13 Sept. 2001
8. Kabai É., Zagyvai P, Lángné Lázi M. -Modelling of radionuclide migration through food chain
27th Annual Meeting on Radiation Protection, May 8-10., 2002, Matrafured,
Hungary
9. N. Vajda, Zs. Molnar, E. Kabai, P. Zagyvai - Radiochemical determination of long-lived radionuclides in environmental samples
II. Eurasian Conference on Nuclear Science and its Application, Almaty,
Kazakhstan, 16-19 Sept. 2002
10. N.Vajda, Zs Molnar, E. Kabai, Sz. Osvath - Simultaneous determination of long-lived radionuclides
Proc 9th International symposium on Environmental Radiochemical
Analysis, Maidstone (UK) 2002

Kutatási jelentések /Research reports/:

11. Vajda N., Kabai É., Molnár Zs. -Radioaktív hulladékok hosszú felezési idejű izotópjainak meghatározása és átalakítási lehetőségeik vizsgálata
Kutatási jelentés BME 30.323/99, 4.3. Feladat, 2000
12. Vajda N., Kabai É., Molnár Zs. -Radioaktív hulladékok hosszú felezési idejű izotópjainak meghatározása és átalakítási lehetőségeik vizsgálata
Kutatási jelentés BME 30.323/99, 4.5. Feladat, 2001